

**UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID**

**FACULTAD DE CIENCIAS FÍSICAS**  
**Departamento de Física Atómica, Molecular y Nuclear**



**CARACTERIZACIÓN DE DETECTORES DE  
FOTONES MEDIANTE EL MÉTODO DE  
MONTECARLO Y APLICACIÓN A LA MEDIDA  
DE EMISORES DE POSITRONES DE INTERÉS EN  
MEDICINA NUCLEAR.**

**MEMORIA PARA OPTAR AL GRADO DE DOCTOR  
PRESENTADA POR**

**Virginia Peyrés Medina**

Bajo la dirección del doctor

Eduardo García-Toraño Martínez

**Madrid, 2010**

**ISBN: 978-84-693-8271-4**

**© Virginia Peyrés Medina, 2010**

**UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID**

**FACULTAD DE CIENCIAS FÍSICAS**

**Departamento de Física Atómica, Molecular y Nuclear**



**CARACTERIZACIÓN DE DETECTORES DE FOTONES  
MEDIANTE EL MÉTODO DE MONTECARLO Y  
APLICACIÓN A LA MEDIDA DE EMISORES DE  
POSITRONES DE INTERÉS EN MEDICINA NUCLEAR**

Memoria para optar al grado de Doctora en Física

por la Universidad Complutense de Madrid

presentada por

**Virginia Peyrés Medina**

Bajo la dirección del Doctor

Eduardo García-Toraño Martínez

Madrid, 2010



**A MIS PADRES**



## **AGRADECIMIENTOS**

En primer lugar quiero expresar mi agradecimiento al Doctor Eduardo García-Toraño, por todo el esfuerzo y tiempo que generosamente ha dedicado a este trabajo. Sus amplios conocimientos y experiencia que ha compartido conmigo me han dado la confianza necesaria para recorrer el camino que termino ahora. Han sido cinco años en los que no sólo he aprendido, sino que además me he divertido trabajando.

A Miguel Roteta que ha leído la versión completa del manuscrito, por sus valiosos comentarios, y por su compañerismo. A todos mis compañeros del Laboratorio de Metrología de Radiaciones Ionizantes del CIEMAT, en especial a su director José M<sup>a</sup> Los Arcos. A Teresa y a Mónica, por la buena acogida que he tenido en el laboratorio. A Alfonso Casado, responsable de la fabricación de las piezas mecánicas que he necesitado.

A mis compañeros del CIEMAT, también amigos, que han estado a mi lado durante todos estos años. A Miguel que creo que es el único amigo ajeno a la materia que ha leído casi todo el documento, le agradezco sus comentarios.

Finalmente, a mi familia y amigos, en especial a mis padres, a mis hermanas, a Jesús y a mis hijos, porque siempre me han escuchado y alentado, sobre todo, en mis momentos de desánimo.



# ÍNDICE

<b>1.</b>	<b>INTRODUCCIÓN .....</b>	<b>1</b>
1.1.	DETECTORES DE RADIACIÓN .....	4
1.1.1.	Interacción de los fotones con la materia .....	4
1.1.2.	Respuesta de un detector .....	7
1.1.3.	Detectores de Centelleo .....	12
1.1.4.	Detectores de Germanio .....	16
1.2.	SIMULACIÓN MONTE CARLO.....	20
1.2.1.	Primeras aplicaciones de la simulación Monte Carlo al cálculo de la eficiencia de detección .....	20
1.2.2.	Conceptos básicos .....	22
1.2.3.	Simulación del transporte .....	23
1.2.4.	Códigos de Monte Carlo .....	25
1.3.	CARACTERÍSTICAS FUNDAMENTALES DE ALGUNOS EMISORES DE POSITRONES .....	27
1.3.1.	$^{22}\text{Na}$ .....	28
1.3.2.	$^{18}\text{F}$ .....	30
1.3.3.	$^{11}\text{C}$ .....	31
1.3.4.	$^{13}\text{N}$ .....	32
1.3.5.	Espectro de energía .....	33
<b>2.</b>	<b>MODELIZACIÓN DE DETECTORES DE GERMANIO PARA SU ESTUDIO MEDIANTE EL MÉTODO DE MONTE CARLO .....</b>	<b>35</b>
2.1.	FUNDAMENTOS.....	35
2.1.1.	Métodos de Optimización .....	38
2.2.	APLICACIÓN AL ESTUDIO DE UN DETECTOR DE Ge DE AMPLIO RANGO DE ENERGÍAS. DETERMINACIÓN DE PARÁMETROS ÓPTIMOS. ....	41
2.2.1.	Sistema de medida .....	41
2.2.2.	Determinación de las eficiencias experimentales .....	48
2.2.3.	Determinación de la eficiencia mediante la Simulación Monte Carlo .....	60
2.2.4.	Optimización.....	65
2.2.5.	Resultados y conclusiones .....	69
2.3.	MODELIZACIÓN DE UNA FUENTE EMISORA DE POSITRONES: DETERMINACIÓN DE LA EFICIENCIA Y APLICACIÓN A LA MEDIDA DE $^{22}\text{Na}$ Y $^{18}\text{F}$ .....	74
2.3.1.	Planteamiento .....	74
2.3.2.	Dispositivo experimental .....	75
2.3.3.	Eficiencia de detección experimental .....	75
2.3.4.	Simulación Monte Carlo .....	86
<b>3.</b>	<b>EL CONCEPTO DE OPTIMIZACIÓN NUMÉRICA APLICADO A LOS MÉTODOS DE MONTE CARLO. APLICACIÓN AL PROBLEMA DE LA OPTIMIZACIÓN DE MODELOS NUMÉRICOS DE DETECTORES.....</b>	<b>97</b>
3.1.	INTRODUCCIÓN.....	97
3.2.	APLICACIÓN AL PROBLEMA DE LA OPTIMIZACIÓN NUMÉRICA DE DETECTORES .....	99
3.2.1.	Problema unidimensional. Optimización de la medida en un bote de plástico .....	101
3.2.2.	Problema bidimensional. Optimización de una geometría de medida de tipo Marinelli .....	107
<b>4.</b>	<b>MODELIZACIÓN DE DETECTORES DE NAI PARA SU ESTUDIO MEDIANTE EL MÉTODO <math>4\pi\gamma</math> APLICACIÓN A LA CALIBRACIÓN DE NUCLEIDOS EMISORES DE POSITRONES .....</b>	<b>117</b>
4.1.	DESCRIPCIÓN DEL MÉTODO $4\pi\gamma$ .....	117
4.1.1.	Simulación detallada .....	119
4.1.2.	Aproximación clásica .....	120



4.2.	SIMULACIÓN POR MONTE CARLO .....	125
4.2.1.	Modelo detallado del detector .....	125
4.2.2.	Obtención de la curva de eficiencia total del detector para emisores monoenergéticos .....	129
4.3.	RESULTADOS .....	130
4.3.1.	Dispositivo experimental.....	130
4.3.2.	Estudio experimental: cálculos y medidas .....	132
5.	MEDIDA DEL PERÍODO DE SEMIDESINTEGRACIÓN MEDIANTE DETECTORES DE GERMANIO .....	153
5.1.	MEDIDA DE PERIODOS CON DETECTORES DE SEMICONDUCTOR .....	153
5.1.1.	Medida directa .....	153
5.1.2.	El problema del tiempo muerto en los sistemas de adquisición basados en detectores de Ge.....	156
5.2.	ADQUISICIÓN DIGITAL DE IMPULSOS.....	164
5.2.1.	Equipo experimental .....	164
5.2.2.	Simulación Monte Carlo del proceso de la desintegración radiactiva .....	168
5.3.	RESULTADOS EXPERIMENTALES .....	185
5.3.1.	Medida del Periodo del $^{18}\text{F}$ .....	185
5.3.2.	Medida del Periodo del $^{13}\text{N}$ .....	197
6.	CONCLUSIONES.....	209
	REFERENCIAS.....	213

## 1. INTRODUCCIÓN

El uso de detectores de fotones es muy común en multitud de campos científicos y aplicaciones tecnológicas. Esta amplia difusión se debe principalmente a que es una técnica no destructiva, de uso muy sencillo y fiable. Una de las aplicaciones más frecuentes es la utilización para la medida de la actividad de fuentes radiactivas. Para esta aplicación se necesita una correcta y precisa calibración ligada a cada problema concreto, o geometría de calibración para la que se pretenda aplicar; ésta es, en ocasiones, de gran complejidad.

Las técnicas de Monte Carlo se utilizan cada vez con más frecuencia como ayuda para estos procesos de calibración. Además de esta aplicación, otras también muy frecuentes son el diseño de nuevos detectores de radiación y la optimización de dispositivos experimentales.

Los radionucleidos emisores de positrones producen radiaciones gamma tras la aniquilación del positrón con un electrón. Por tanto, los detectores de fotones pueden ser calibrados y caracterizados mediante técnicas de Monte Carlo para la medida del fotón de aniquilación. Sin embargo, debido a las características especiales de la emisión de éstos, la calibración del detector realizada con fotones emitidos por la desexcitación de radionucleidos emisores gamma no es directamente aplicable.

Por otra parte, este tipo de emisores son utilizados cada vez con más frecuencia en el campo de la medicina nuclear. La medicina nuclear es una especialidad médica que utiliza radiofármacos, es decir, fármacos marcados con un isótopo radiactivo que se introduce dentro del organismo humano con un fin diagnóstico o terapéutico.

Para la seguridad en la utilización de estas técnicas es muy importante poder realizar una calibración precisa de los radionucleidos más utilizados, con objeto de tener una medida precisa de la actividad que se aplica en cada paciente. Así es en el caso de las aplicaciones de diagnóstico por imagen mediante tomografía por emisión de positrones, técnica conocida como PET. El activímetro, también llamado calibrador de dosis, es el instrumento que se utiliza para medir las actividades de los radiofármacos que han de administrarse a los pacientes, por lo que es imprescindible garantizar la fiabilidad de sus medidas mediante la calibración con fuentes patrón trazables al laboratorio nacional, para los radionucleidos utilizados en medicina nuclear [2].

Otra característica de los radionucleidos emisores de positrones que se usan en medicina nuclear es que suelen tener periodos de semidesintegración muy cortos. Su caracterización precisa es fundamental para la determinación la dosis correcta que se suministra a un paciente.

El objetivo del presente trabajo es desarrollar procedimientos de calibración, en términos de actividad, específicos para este tipo de radionucleidos, con la ayuda de la simulación de los detectores utilizados para las medidas mediante el método de Monte Carlo. También se realizarán medidas del periodo de semidesintegración de uno de los radionucleidos más utilizados en medicina nuclear,  $^{18}\text{F}$ , con detectores de Germanio.

En el capítulo 2 se presenta la calibración en eficiencias de un detector de Germanio mediante una combinación de medidas y cálculos Monte Carlo, en un rango de energías amplio (14-1800 keV) con incertidumbres del orden del 1 %. Con este procedimiento se puede predecir el valor de la eficiencia a energías en las que es difícil o imposible obtener medidas directas. Esta aproximación se basa en el uso de las secciones eficaces de interacción, lo que minimiza algunos problemas que pueden aparecer cuando se utilizan ajustes funcionales o interpolaciones numéricas a partir de datos. Se estudia, a continuación, la extensión del método a la medida de radionucleidos emisores de positrones, cuyo decaimiento va acompañado de la emisión de radiaciones de aniquilación de 511 keV. El procedimiento seguido consistirá en la determinación de las condiciones óptimas experimentales, de manera que la medida de una fuente emisora de positrones pueda llevarse a cabo en las condiciones más parecidas posible a las de las fuentes gamma convencionales. Para ello, se van a ensayar diversas configuraciones en

las que la fuente original se rodea de un absorbente, de manera que la aniquilación de los positrones se produzca cerca del punto donde fueron emitidos y la eficiencia de detección sea cercana a la que correspondería a un fotón gamma de energía similar. El método se aplicará al estudio de dos emisores de positrones muy importantes en el campo de la Medicina Nuclear:  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$ . Se estudiará cómo se podría aplicar el método para otros radionucleidos con diferentes energías de emisión de los positrones. En particular, para los radionucleidos  $^{11}\text{C}$  y  $^{13}\text{N}$ .

En el capítulo 3 se proponen diversos métodos de optimización numérica aplicados a los métodos de Monte Carlo. En particular se presentarán ejemplos de optimización de geometrías de medida para varios casos particulares.

En el capítulo 4 se estudiará la aplicación del método conocido como  $4\pi\gamma$  a la medida de fuentes radiactivas emisoras de positrones. Por medio de una simulación de Monte Carlo se calcula la eficiencia de detección para los positrones emitidos por los nucleidos  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$  en dos configuraciones experimentales diferentes basadas en el uso de un detector de pozo de NaI(Tl). Los resultados de la calibración de dos disoluciones, que se comparan con los obtenidos por otras técnicas, muestran que es posible utilizar el método  $4\pi\gamma$  para la calibración absoluta de emisores de positrones puros y de aquellos que se desexcitan por emisión fotónica.

Finalmente, en el capítulo 5 se propondrá un método para medir el período de semidesintegración de nucleidos emisores de positrones de periodos muy cortos mediante detectores de Ge. Se han estudiado los diferentes factores de influencia en la determinación del periodo, tales como el área de medida, el problema del tiempo muerto en los sistemas de adquisición basados en detectores de Ge y el diseño de la cadena electrónica óptima. Se ha diseñado un sistema de adquisición digital para la realización de tales correcciones. Se ha obtenido una medida del periodo de semidesintegración del  $^{18}\text{F}$  con una mejora significativa de la incertidumbre de la medida respecto a medidas anteriores. Por último, se ha estudiado la aplicabilidad del método a otros radionucleidos de periodo muy corto como el  $^{13}\text{N}$ .

## 1.1. DETECTORES DE RADIACIÓN

En este capítulo se describen los dos tipos de detectores que se han utilizado en esta tesis, es decir, los detectores de Germanio y los detectores de NaI(Tl). Antes de comenzar con la descripción de los mismos se explicarán brevemente los procesos de interacción de la radiación con la materia, ya que su conocimiento es esencial para poder entender la respuesta de un detector.

### 1.1.1. Interacción de los fotones con la materia

Cuando la radiación  $\gamma$  o X penetra en la materia interacciona con la misma mediante distintos mecanismos. Un haz colimado de fotones que atraviesa una lámina de espesor  $x$  ve atenuada su intensidad incidente  $I_0$ , en la forma:

$$I_x = I_0 e^{-\frac{N\sigma}{A}x}$$

donde  $N$  es el número de Avogadro;  $A$ , la masa atómica del blanco y  $\sigma$  la sección eficaz por átomo. En realidad la sección eficaz  $\sigma$  es una magnitud compuesta por la adición de las probabilidades de varios fenómenos. Los tres mecanismos importantes de interacción desde el punto de vista de la medida de la radiación son: absorción fotoeléctrica, dispersión inelástica o Compton y producción de pares.

#### 1.1.1.1 Absorción fotoeléctrica

En el proceso de absorción fotoeléctrica, un fotón interacciona con un átomo. En la interacción, el fotón desaparece y en su lugar un fotoelectrón de la corteza del átomo es emitido con una energía igual a  $h\nu - I$ , donde  $I$  representa el potencial de ionización de la capa donde se encontraba el electrón. Para energías gamma por encima del centenar de keV, el fotoelectrón se lleva la mayor parte de la energía original del fotón. Además del fotoelectrón, la interacción crea una vacante en uno de los orbitales de la corteza del átomo con el que ha interaccionado. Esta vacante será ocupada inmediatamente mediante la captura de un electrón del medio. Tras el reordenamiento electrónico de la corteza del átomo se emitirán uno o mas rayos X característicos, y electrones [3].

La interacción por efecto fotoeléctrico es el modo predominante para fotones gamma (o rayos X) de energía relativamente baja. Este proceso se ve favorecido en materiales de número atómico ( $Z$ ) elevado. La probabilidad de absorción fotoeléctrica por átomo sobre todos los rangos de energía  $E_\gamma$  y para un átomo de número atómico  $Z$  es aproximadamente:

$$\tau \cong \text{const.} \times \frac{Z^n}{E_\gamma^{3,5}}$$

donde el exponente  $n$  varía entre 4 y 5 para las energías gamma de interés.

### 1.1.1.2 Dispersión inelástica o Compton

Este proceso de interacción tiene lugar entre un fotón gamma incidente y un electrón del material absorbente. Es el mecanismo de interacción predominante para las energías fotónicas típicas de los radionucleidos emisores gamma.

En la interacción Compton el fotón gamma es dispersado un ángulo  $\theta$  respecto a su dirección original. El fotón transfiere una parte de su energía al electrón. Debido a que todos los ángulos de dispersión están permitidos, la energía transferida al electrón puede variar desde cero a una fracción alta de la energía del fotón incidente. En la figura 1.1 se representa esta interacción.

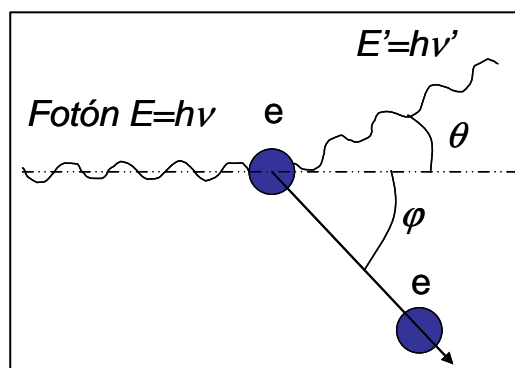


Figura 1. 1. Interacción Compton

La expresión que relaciona la energía transferida y el ángulo para una interacción se puede deducir de las ecuaciones de conservación del momento y la energía:

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + \frac{h\nu}{m_0 c^2} (1 - \cos \theta)}$$

Parte de la energía original la mantiene siempre el fotón, incluso en el caso extremo de  $\theta = \pi$ . La distribución angular de la sección eficaz para este proceso fue establecida por Klein y Nishina [4] y tiene el valor de:

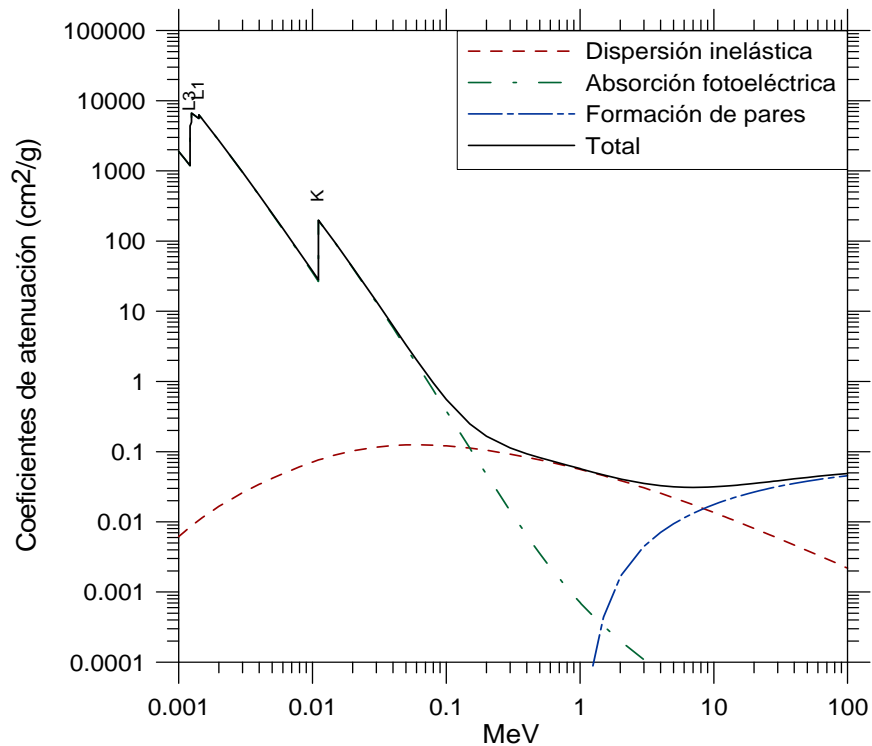
$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = Zr_0^2 \left( \frac{1}{1 + \alpha(1 - \cos \theta)} \right)^2 \left( \frac{1 + \cos^2 \theta}{2} \right) \left( 1 + \frac{\alpha^2 (1 - \cos \theta)^2}{(1 + \cos^2 \theta)[1 + \alpha(1 - \cos \theta)]} \right)$$

donde  $\alpha \equiv h\nu / m_0 c^2$  y  $r_0$  es el radio clásico del electrón.

### 1.1.1.3 Producción de pares

Si la energía del fotón gamma incidente es mayor de 1022 keV (el doble de la energía en reposo del electrón), el proceso de la producción de pares electrón-positrón es energéticamente posible. Sin embargo, la probabilidad de esta interacción es muy baja hasta que la energía del fotón gamma es de varios MeV. En la interacción (que se produce en el campo eléctrico del núcleo atómico), el fotón gamma desaparece y es reemplazado por un par electrón/positrón. El exceso de energía por encima de 1,02 MeV necesario para crear el par se convierte en energía cinética distribuida entre el positrón y el electrón. Debido a que el positrón se aniquila después de desplazarse por el medio absorbente, se producen dos fotones de aniquilación como producto secundario de este proceso de interacción. La probabilidad de producción de pares por núcleo varía, aproximadamente, con el cuadrado del número atómico del absorbente.

Para ilustrar la importancia relativa de estos procesos en función de la energía se ha representado en la figura 1.2 su dependencia en Germanio (dispersión inelástica, absorción fotoeléctrica y producción de pares). Los datos se han obtenido mediante el programa XCOM [5].



**Figura 1. 2. Coeficientes de interacción parciales de varios procesos (dispersión inelástica, absorción fotoeléctrica y producción de pares) en Germanio. Datos obtenidos mediante el programa XCOM.**

### 1.1.2. Respuesta de un detector

Para que un detector se pueda utilizar como un espectrómetro de radiación gamma se tiene que cumplir la condición de que la radiación incidente tenga una probabilidad de interacción suficiente para producir, al menos, un electrón rápido y, además, el tamaño del detector tiene que ser lo suficientemente grande para que el escape de los electrones secundarios no sea significativo. En la figura 1.3 se presenta el espectro típico que se puede obtener con un detector de fotones. En la misma se aprecian las diferentes partes del espectro que analizaremos a continuación: fotopico, escape de rayos X característicos, el espectro continuo debido a dispersión Compton y el escape simple de un fotón tras una aniquilación, escape doble, pico de retrodispersión, pico fotoeléctrico debido a rayos X emitidos por el blindaje, y pico de 511 keV debido a la emisión de fotones de aniquilación.



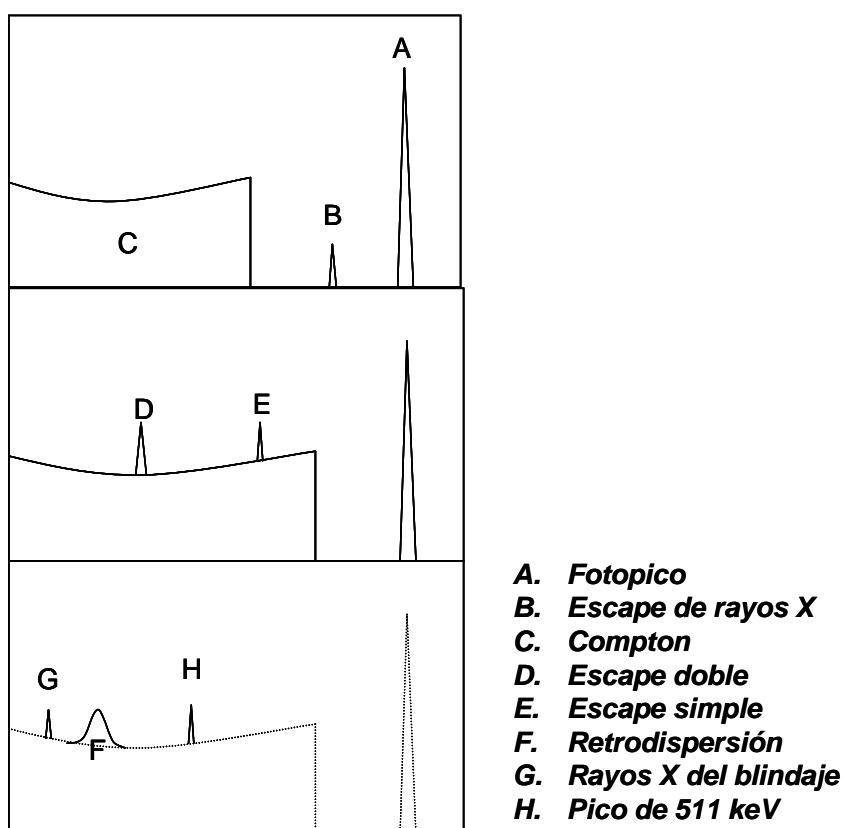


Figura 1. 3. Espectro de energía esperado en un detector de fotones.

- A. **Fotopico** o pico de absorción total de energía. Cuando un fotón interacciona por efecto fotoeléctrico se produce un fotoelectrón, que lleva la mayor parte de la energía del fotón gamma, junto con varios electrones de menor energía correspondientes a la absorción de la energía de enlace del fotoelectrón (absorción de los rayos X característicos del material, producidos tras la emisión del fotoelectrón, o emisión de electrones Auger). Si no se produce ningún escape de rayos X o electrones del detector, entonces la suma de la energía de todos estos electrones será igual a la del fotón gamma incidente. En estas condiciones la distribución de la energía cinética de una serie de sucesos de absorciones fotoeléctricas producirá una función delta.

$$\delta(x) = \begin{cases} \infty, & x = 0 \\ 0, & x \neq 0 \end{cases}$$

- B. **Escape de rayos X característicos.** En el proceso de absorción fotoeléctrica se emiten rayos X característicos del material absorbente. En la mayor parte de los

casos estos rayos X son reabsorbidos en un punto cercano a aquel donde se produce la interacción. Si la absorción fotoeléctrica se produce cerca de la superficie del detector, puede suceder que el fotón X escape. En este suceso, la energía depositada en el detector es inferior a la del fotón incidente en una cantidad igual a la energía del fotón X. Este pico aparece cuando la energía del fotón gamma incidente no es demasiado alta y cuando la relación entre la superficie del detector y el volumen es grande.

- C. **Continuo Compton.** Como resultado de una interacción Compton, la energía del electrón producido será:

$$E_{e^-} = h\nu - h\nu' = h\nu \left( \frac{(h\nu / m_0 c^2)(1 - \cos \theta)}{1 + (h\nu / m_0 c^2)(1 - \cos \theta)} \right)$$

En el caso extremo de un ángulo de dispersión de  $180^\circ$  ( $\theta = \pi$ ), el electrón recibe la energía máxima transferible por una interacción Compton simple:

$$E_{e^-} \big|_{\theta=\pi} = h\nu \left( \frac{2(h\nu / m_0 c^2)}{1 + 2(h\nu / m_0 c^2)} \right)$$

En circunstancias normales un fotón puede dispersarse por interacción Compton en cualquier ángulo de dispersión. Así, la energía transferida al electrón puede variar desde cero hasta la energía máxima para el ángulo de dispersión,  $\theta = \pi$ , conocido como borde Compton. La forma de la distribución de energías de los electrones corresponderá con la distribución angular de la sección eficaz establecida por Klein y Nishina [6].

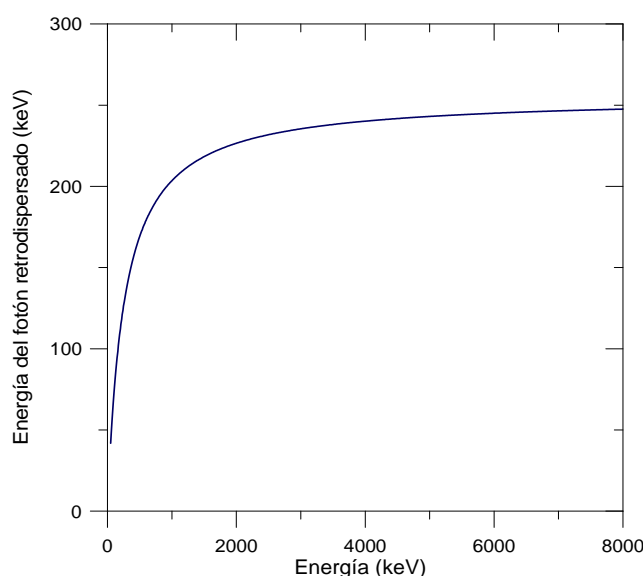
- D. **Pico de Escape doble.** Si la energía de fotón gamma incidente es lo suficientemente alta (varios MeV) se puede producir el proceso de interacción por producción de pares. Cuando el detector es muy pequeño, solo se deposita en el detector la energía cinética del electrón y el positrón, mientras que la radiación de aniquilación escapa. El efecto en el espectro es un pico situado a una energía de  $2m_0 c^2$  por debajo del fotopico.
- E. **Pico de Escape simple.** Otra posibilidad es que uno de los fotones producidos en el proceso de aniquilación de un positrón generado tras una interacción por producción de pares escape, mientras que el otro fotón sea totalmente absorbido.
-

En el caso, aparece en el espectro un pico situado a una energía de  $m_0c^2$  por debajo de fotopico.

Existen además unas estructuras en el espectro de energía medido con un detector que corresponde a la interacción de la radiación con los materiales que rodean el detector (por ejemplo blindajes). Estos son:

F. **Retrodispersión de fotones gamma.** El espectro de los detectores de fotones muestra un pico situado en el intervalo de energías 200-250 keV, que se conoce como pico de retrodispersión. Este pico está causado por los fotones gamma emitidos por la fuente que interaccionan por dispersión Compton en los materiales que rodean el detector. La energía de los fotones de retrodispersión es prácticamente idéntica cuando el ángulo es mayor que aproximadamente 110°-120° [3]. Así, la energía del pico de retrodispersión correspondiente a un ángulo de dispersión de 180° es:

$$h\nu'_{|\theta=\pi} = \frac{h\nu}{1 + 2h\nu / m_0c^2}$$



**Figura 1.4. Energía correspondiente al pico de retrodispersión para ángulos de 180°.**

La figura 1.4 representa el valor de la energía del fotón dispersado un ángulo de  $180^\circ$  en el blindaje frente a la energía del fotón. En el límite en el que la energía del fotón incidente es grande ( $h\nu \gg m_0c^2/2$ ), la expresión anterior se convierte en:

$$h\nu'_{|\theta=\pi} \cong \frac{m_0c^2}{2}$$

Es decir, el pico de retrodispersión se sitúa a una energía de 250 keV o ligeramente inferior.

- G. **Rayos X característicos del blindaje.** La absorción fotoeléctrica en el blindaje genera rayos X característicos que pueden alcanzar el detector si el número atómico del blindaje es alto, ya que los fotones X serán, en ese caso, lo suficientemente energéticos.
- H. **Pico de 511 keV.** Cuando la energía de la radiación gamma es lo suficientemente alta, podrá interactuar mediante el mecanismo de producción de pares positrón/electrón. Se producirá entonces radiación de aniquilación que llegará al detector. Por tanto, aparecerá un pico de 511 keV en el espectro.

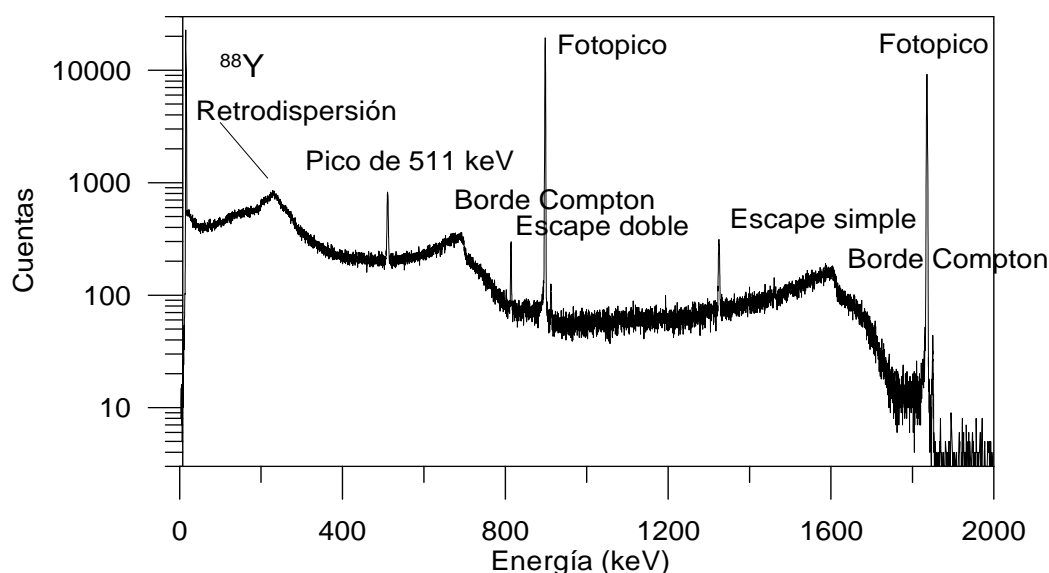
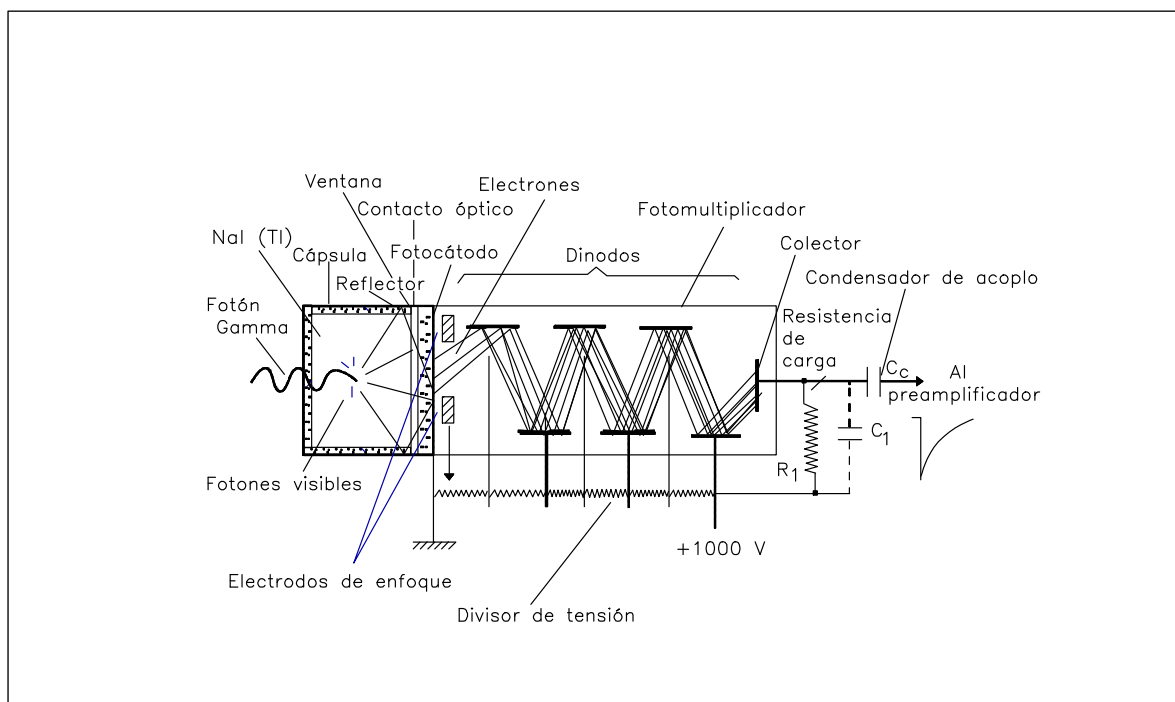


Figura 1. 5. Componentes del espectro de  $^{88}\text{Y}$  medido con un detector de Germanio.

La figura 1.5 se presenta un espectro de  $^{88}\text{Y}$  medido con un detector de Germanio de rango extendido en el que se aprecian las diferentes componentes del espectro, esto es: dos picos fotoeléctricos, uno situado a 1836 keV y el otro a 898 keV, que corresponden con la energía de los fotones emitidos en la desintegración radiactiva del  $^{88}\text{Y}$ ; los bordes del continuo Compton correspondiente a estas dos energías; el pico de escape simple del fotón de aniquilación y el pico de escape doble debido. Respecto a los efectos del blindaje, se observan el pico de 511 keV y el debido a la retrodispersión en el blindaje.

### **1.1.3. Detectores de Centelleo**

Un material luminiscente es capaz de convertir la energía depositada en él por la interacción de la radiación ionizante en un pulso de luz. Los pulsos de luz emitidos por el material luminiscente se pueden detectar mediante un dispositivo sensible a ella. Esto se hace normalmente por medio de un tubo fotomultiplicador (PMT), figura 1.6. Un tubo fotomultiplicador es un dispositivo compuesto por una ampolla cilíndrica de vidrio en la que se ha hecho un vacío elevado. En una de sus bases, en la cara interna se encuentra depositado el "fotocátodo", aleación de antimonio, cesio y potasio, en forma de capa tan fina que es completamente transparente, y una serie de electrodos, llamados "dinodos", en disposición geométrica conveniente, y polarizados a tensión creciente de unos 100 V. El fotocátodo del PMT convierte la luz en fotoelectrones. Estos son acelerados mediante un campo eléctrico hacia los dinodos que forman el PMT, donde además se produce un proceso de multiplicación. El resultado es que cada pulso de luz produce otro de corriente en el ánodo del PMT que puede detectarse, analizarse y medirse mediante un equipo electrónico y un contador de pulsos apropiado.



**Figura 1. 6. Representación gráfica de un detector de centelleo**

Esta combinación (material luminiscente, PMT y equipo electrónico) se le denomina detector de centelleo, en la figura 1.6 se representa un esquema del mismo. Debido a que la intensidad del pulso de luz emitida por el material de centelleo es aproximadamente proporcional a la energía de la radiación depositada, estos detectores se pueden utilizar para medidas espectroscópicas.

Si se quiere detectar radiación gamma con una cierta eficiencia, las dimensiones del detector se deben elegir de modo que la fracción deseada sea absorbida en el material de centelleo. Para que esta eficiencia sea alta es deseable una densidad y un número atómico alto del material.

Otras características importantes del material son la intensidad del pulso de luz emitido, que debe ser lo más alta posible, y la constante de extinción luminiscente del material de centelleo,  $\tau_e$ , es decir: el tiempo que tarda la intensidad del pulso de luz en volver a un valor de  $1/e$  de su valor máximo. Este tiempo refleja la facultad para definir con precisión el momento en el que se produce la absorción del fotón en el detector. Es un parámetro muy importante cuando se pretende medir a tasas de recuento muy altas, o para aquellas mediciones en las que se necesita realizar un control preciso del tiempo de

medida. El valor de  $\tau_e$  alcanza valores tan bajos como 10 ns en materiales luminiscentes formados por compuestos orgánicos.

El material más utilizado como cristal de centelleo para la detección de fotones gamma es el yoduro de Sodio activado con Talio (NaI(Tl)). El NaI(Tl) tiene un coeficiente de conversión luminiscente muy alto. La autoabsorción a la luz de centelleo es muy baja. El espectro de luz de centelleo emitido mantiene una buena correspondencia con la curva de sensibilidad del fotocátodo del tubo fotomultiplicador. El NaI(Tl) produce, para una radiación dada absorbida en el cristal, la mayor señal de todos los materiales luminiscentes conocidos. En óptimas condiciones, el numero medio de fotoelectrones producido por cada MeV depositado por un fotón gamma es de  $1 \times 10^4$ .

Sin embargo, el NaI(Tl), como todos los cristales de centelleo, tiene una resolución en energía muy pobre, de forma que los espectros de energía presentan picos relativamente anchos.

La resolución en energía se define como:

$$R = \frac{FWHM}{H_0}$$

donde *FWHM* anchura del pico a mitad del su altura expresando en energía y  $H_0$  es el valor de la energía.

En la mayoría de los casos la pérdida de resolución se debe a factores estadísticos en mayor medida que a otras posibles fuentes de pérdida. Esto se debe a que la conversión de la radiación incidente en una señal eléctrica conlleva una serie de pasos muy ineficientes. Por ejemplo, la energía necesaria para producir un fotoelectrón es del orden de 100 eV; así, el número de fotoelectrones generado en la interacción típica es de unos pocos miles. La fluctuación estadística inherente a este número pequeño de sucesos es, por tanto, la mayor limitación a la resolución en energía. Como la resolución varía con la energía, normalmente ésta se expresa especificando la energía a la que se refiere. Por ejemplo, la resolución típica del NaI(Tl) para el  $^{137}\text{Cs}$  (0,662 MeV) operando en condiciones óptimas suele estar comprendida entre un 6-7 %.

Respecto a la constante de extinción luminiscente, el NaI(Tl) tiene un valor de 0,23  $\mu$ s a temperatura ambiente (25 °C), con una suave tendencia a decrecer con la temperatura hasta un valor de 180 ns a 180 °C [7].

El NaI(Tl) puede ser fabricado en una gran variedad de formas y tamaños; estos pueden tener desde unos pocos mm hasta cerca de medio metro. En este último caso se compensa de forma apropiada para que proporcione una respuesta uniforme en toda la superficie del detector. El material luminiscente va montado en un soporte, normalmente de aluminio con un espesor que depende de la aplicación, un blindaje magnético de  $\mu$ -metal, y finalmente, el cristal es adaptado al PMT. En la figura 1.7 se muestran algunos ejemplos de detectores comerciales.

La forma más utilizada es un cristal cilíndrico de NaI. Para algunas aplicaciones el cilindro tiene un pozo en su interior. Estos últimos se utilizan para medidas en las que se busca eficiencias de recuento altas, ya que la muestra se sitúa en el interior del cristal con una geometría cercana a  $4\pi$  sr. Las muestras pueden ser sólidas o líquidas de volúmenes pequeños. En algunos diseños, el cristal tiene un hueco cilíndrico taladrado en la dirección perpendicular a su eje. Estos cristales se utilizan para eficiencias de recuento gamma altas, sobre todo para el estudio de fluidos.



**Figura 1. 7. Diseños estándar de detectores de centelleo de NaI(Tl). La foto muestra el cristal acoplado al fotomultiplicador.**

Otras formas utilizadas para aplicaciones especiales son:

- Detectores hexagonales, que se utilizan para la detección de radiación de alta energía, ensamblados en paquetes compactos formados por varios detectores.



- Detectores de base cuadrada, utilizados para la misma aplicación y ensamblados de la misma forma en estructuras formadas por varios detectores.
- Detectores con forma de placa delgada (alturas de entre 6 y 25 mm) con base circular o rectangular, que se utilizan en algunas gamma cámaras utilizadas en medicina nuclear.
- Sistemas anti-Compton, es decir: un cristal o grupo de ellos rodea a otro detector (normalmente un detector de Germanio) con el objetivo de detectar un fotón Compton dispersado por el detector al que rodea y producir un señal de anticoincidencia. El objetivo de estos sistemas es mejorar el espectro del detector.
- Detectores esféricos que proporcionan un sensibilidad uniforme

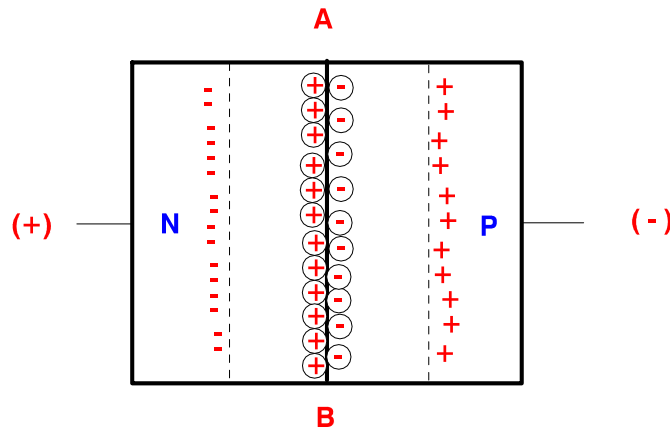
#### **1.1.4. Detectores de Germanio**

Como ya se ha mencionado, el mayor inconveniente de los detectores de centelleo es su baja resolución en energía. Se expuso que la forma de mejorarla es mediante el aumento del número de portadores de información, es decir: para este tipo de detectores, los fotoelectrones producidos en el proceso de interacción de la radiación con la materia. En los detectores de semiconductor los portadores de información son los pares electrón-hueco producidos tras interacción de la radiación en el material semiconductor. La ventaja de estos detectores es que la pequeña energía de ionización, de aproximadamente 3 eV en el caso del Germanio, permite un aumento considerable del número de cargas creadas para una energía depositada dada. El inconveniente es que algunos electrones de la banda de valencia pueden tener la suficiente energía térmica como para alcanzar la banda de conducción. Ello obliga a operar a bajas temperaturas para disminuir su número.

Para crear un campo eléctrico lo suficientemente grande que permita una recogida de carga eficiente, se debe aplicar un voltaje al semiconductor de cientos o miles de voltios. Incluso en ausencia de radiación ionizante, todos los detectores tienen una conductividad finita y, por tanto, en esta situación se observará una cierta corriente eléctrica denominada corriente de fuga. Las fluctuaciones en esta tienden a oscurecer la

señal de corriente que aparece cuando se produce un suceso ionizante. De esta forma, los métodos para reducir esta señal son de gran importancia en el diseño de detectores de semiconductor.

Con este fin se construyen los detectores de Germanio en forma de diodos de semiconductor con una estructura P-I-N, en los cuales se crea una región intrínseca (I) o zona de carga espacial libre de portadores, la cual es sensible a la radiación ionizante, en particular a la radiación X y gamma. Cuando el detector es polarizado con un voltaje inverso, se extiende un campo eléctrico a lo largo de la región intrínseca aumentando la anchura de la misma. La región I posee una alta resistividad y, por tanto, la corriente de fuga es muy baja. En la figura 1.8 se presenta un esquema de la unión P-N. Si en esta zona se producen portadores (electrones y huecos) debido a la interacción de la radiación en la zona intrínseca, estos son rápidamente acelerados y captados por los electrodos de polarización. La carga creada, que es proporcional a la energía depositada en el detector por el fotón que interacciona, es convertida en un pulso de voltaje mediante un preamplificador sensible a carga.



**Figura 1. 8. Representación gráfica de una unión N-P.**

La anchura de la zona libre de portadores de carga viene dada por:

$$d = \left( \frac{2\varepsilon}{eN} \right)^{1/2}$$

donde  $V$  es el voltaje aplicado,  $N$  es la concentración de impurezas en el cristal,  $e$  la carga del electrón y  $\varepsilon$  la energía necesaria para producir un par electrón-hueco (en eV). De forma que, para un voltaje dado, si se quiere conseguir un volumen útil lo suficientemente grande se debe reducir la concentración neta de impurezas. En los detectores fabricados con Germanio se han conseguido niveles de pureza muy grandes: del orden de  $10^{10}$  átomos/cm<sup>3</sup>. Con este material se consiguen unos detectores con anchuras de carga espacial de 10 mm, y que reciben el nombre de detectores de Germanio ultrapuro: HPGe.

En función de la aplicación, existe una amplia variedad de tipos de detectores HPGe. Los más utilizados son los detectores planos, los detectores coaxiales, los detectores coaxiales de electrodo inverso, los detectores de rango extendido y los detectores de pozo. La figura 1.9 presenta un esquema de los diferentes tipos de detectores de Germanio de uso más común.

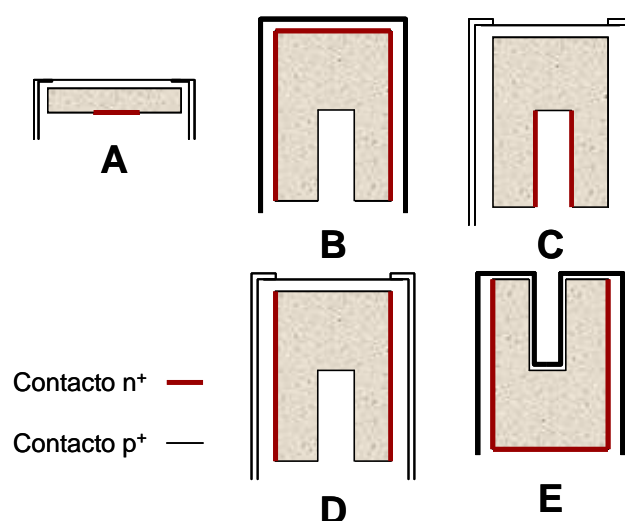


Figura 1. 9. Diferentes tipos de detectores de Germanio ultrapuro.

- **Detectores planos.** Los detectores de Germanio planos se utilizan para la medida de fotones de baja energía, en el rango de desde varios cientos de eV hasta unos 100 keV. Son cilindros con áreas de entre 0,5 y 20 cm<sup>2</sup> y espesores de entre 5 y 20 mm. Tienen un contacto n<sup>+</sup> en la cara posterior

formado mediante la difusión de iones de Litio y un contacto  $p^+$  fabricado normalmente por la implantación de una fina capa de iones de Boro.

- **Detectores coaxiales.** El llamado normalmente HPGe coaxial es el detector de Germanio más utilizado. Básicamente está formado por un cilindro de Germanio con un contacto tipo  $n^+$  en la superficie exterior y uno tipo  $p^+$  en la superficie del pozo cilíndrico interior. El contacto tipo  $n$  se forma mediante la difusión de iones de litio, con un espesor de aproximadamente 0,5 mm; esto hace que se cree una capa inactiva en la que frena la mayor parte de los fotones por debajo de 40 keV, lo que hace que el detector no pueda trabajar por debajo de esas energías. El contacto de tipo  $p$  se crea mediante el implante de iones de Boro, aunque puede ser sustituido por una barrera superficial. El espesor de este contacto suele ser de aproximadamente 3  $\mu\text{m}$ . Los contactos forman una capa inactiva desde el punto de vista de la detección de fotones. Por tanto, el rango de energías útil de este tipo de detectores comienza en torno a 50 keV.
- **Detectores coaxiales de electrodo inverso (REGe).** Su geometría es similar a la de los detectores coaxiales convencionales, con la diferencia de que los electrodos se sitúan con una configuración inversa; es decir, el contacto  $p^+$  en la superficie exterior y el  $n^+$  en la superficie interior. La ventaja es doble: por una parte, una mayor resistencia a daños por radiación; por otra, se dispone de una capa muerta de Germanio exterior mucho más fina (del orden de 0,2-0,3  $\mu\text{m}$ ). La ventana de la carcasa del detector está fabricada de un material ligero, como carbón epoxy o berilio, y es también muy fina (del orden de 0,5 mm). Esto hace posible, junto con la extremadamente fina capa muerta de Germanio, que el rango de medida sea muy amplio: desde 3 keV hasta 10 MeV.
- **Detectores de Germanio coaxial de rango extendido (XRange).** Es un detector coaxial con una capa de Germanio inactivo en su superficie superior muy fina, de forma que extiende el rango de energías útiles

hasta la región de 5 keV. Al ser un detector de tipo  $p^+$  tiene las ventajas asociadas a este tipo de detectores (una mejor recogida de carga y debido a ello una resolución en energía mejor). El cilindro exterior (donde apoya el soporte del cristal) mantiene el contacto de Li que es mucho mas robusto que el contacto  $n^+$  (implante de iones de Boro) que tienen los detectores de electrodo invertido y que puede provocar en los últimos pequeños defectos. Como en el caso anterior, la ventana exterior suele estar fabricada de carbón epoxy o berilio.

- **Detectores de pozo.** Los detectores de pozo permiten tener eficiencias muy altas para muestras muy pequeñas debido a que la fuente está virtualmente rodeada por el detector. Son detectores HPGe cilíndricos con un pozo cilíndrico perforado en su interior. La carcasa del detector suele ser de aluminio, con espesores en torno a 0,5 mm en el interior del pozo. El contacto interior del detector, normalmente construido por implantación de iones o de barrera superficial, tendrá, de esta forma, un espesor despreciable frente al de la carcasa de aluminio.

## 1.2. SIMULACIÓN MONTE CARLO

### 1.2.1. Primeras aplicaciones de la simulación Monte Carlo al cálculo de la eficiencia de detección

Las primeras aplicaciones de los métodos de Monte Carlo a la simulación de la interacción de la radiación con la materia se realizaron en los años 50. Hayward y Hubbell [8] realizaron cálculos para el estudio de la reflexión de la radiación gamma en varios medios. Para ello generaron 67 historias fotónicas utilizando una calculadora manual. Posteriormente, Berger y otros autores [9, 10] realizaron estudios enfocados al análisis de la retrodispersión de la radiación en diferentes medios en un intervalo de energía entre 20 keV y 2,0 MeV. Entre los resultados daban el albedo, la distribución de energía reflejada y la distribución angular de la radiación reflejada.

La simulación de fotones fue realizada de forma directa, es decir, se utilizaron las secciones eficaces para obtener recorridos, ángulos de dispersión etc., ya que el

número medio de eventos en cada historia de un fotón es relativamente bajo. Un fotón es absorbido después de una sola interacción fotoeléctrica o producción de pares o después de unas pocas interacciones Compton. Con las capacidades de los ordenadores actuales la simulación detallada del transporte de fotones es una tarea relativamente asequible.

La simulación de electrones y positrones entraña más dificultades que para el caso de fotones. La principal razón es que la energía perdida por un electrón en una interacción simple es muy pequeña, del orden de unas decenas de eV. Así, un electrón de alta energía sufre un número muy grande de interacciones antes de ser absorbido en el medio. En la práctica, solo es posible una simulación detallada cuando el número de colisiones por cada camino de un electrón no es demasiado grande, de unos pocos eventos. A pesar de esta dificultad del estudio del transporte de electrones en comparación con el de fotones, se han publicado muchos trabajos sobre la simulación Monte Carlo del transporte de partículas cargadas. Entre otros estudios destaca el de Hebbard y Wilson [11] que estudiaron la transmisión de electrones de 1 MeV a través de láminas de aluminio y oro, y determinaron la pérdida de energía más probable y el espectro de energía de los electrones transmitidos para láminas de varios espesores. La aplicación más extensa de los métodos de Monte Carlo a partículas cargadas se debe a Berger [12].

Una de las aplicaciones más extendidas de los métodos de Monte Carlo es la determinación de la eficiencia de detección total y de absorción total de energía o eficiencia fotoeléctrica de los detectores de radiación gamma [13]. Los primeros trabajos los realizaron Wainio y Knoll [14] y De Castro Faria y Levesque [15], para el estudio de detectores planos de silicio planos y de Germanio. Gaggero [16], Aubin y col. [17], Lal y Iyengar [18] y Peterman y col. [19] realizaron estudios para el cálculo de la eficiencia de detectores de Ge coaxiales. La siguiente generación de códigos añadió la atenuación fotónica e introdujo geometrías más complejas. Ejemplos de estos trabajos son: Nakamura [20], Birattari [21], Rieppo [22], Debertin [23], Nakamura y Suzuki [24] y un trabajo posterior de Herold y Kouzes [25]. La comparación entre la eficiencia calculada y las medidas realizadas indica que existen diferencias de entre un 5 y un 10 %.

En los últimos años se ha generalizado la simulación numérica mediante métodos de Monte Carlo de la interacción de la radiación gamma con los detectores de Germanio para diversas aplicaciones. Por ejemplo, y sin pretender ser exhaustiva; para el cálculo de la auto-absorción en fuentes extensas [26-29]; para el cálculo de correcciones por suma en coincidencia [30-35]; para el cálculo de transferencia de eficiencias entre diferentes geometrías de calibración [36, 37]; y, por último, una de las aplicaciones más extendidas: para el cálculo de la curva de eficiencia de un detector de Germanio [13, 26, 27, 33, 38-45].

Cuando se simulan detectores de centelleo, la relación entre la energía depositada y la luz emitida se caracteriza por una fuerte alinealidad [46]. Estos efectos no lineales son importantes en estudios de espectrometría, pero pueden obviarse cuando el objetivo del cálculo es la estimación de la eficiencia total del detector.

### 1.2.2. Conceptos básicos

La característica fundamental de los métodos de simulación de Monte Carlo radica en el uso de números y variables aleatorias. En general, se pueden utilizar tanto para resolver problemas deterministas como problemas con componentes aleatorias. Básicamente, se simula secuencialmente la probabilidad de que ocurra un suceso en un proceso. Para describir completamente el fenómeno, se muestrea estadísticamente la distribución de probabilidad que gobierna estos sucesos. El proceso de muestreo estadístico se basa en la selección de números aleatorios de ahí el nombre de Monte Carlo.

Desde el punto de vista formal [47], el método de Monte Carlo equivale a resolver una integral. Por ejemplo, consideremos la integral:

$$I = \int_a^b F(x)dx$$

La cual se puede reescribir en términos de un valor esperado

$$I = \int f(x)p(x)dx \equiv \langle f \rangle$$

donde  $p(x)$  es una función distribución de probabilidad arbitraria, y por tanto,

$$f(x) = \frac{F(x)}{p(x)}$$

La evaluación mediante una simulación Monte Carlo consiste en generar un número,  $N$ , de números aleatorios,  $x_i$ , obtenidos a partir de la función distribución de probabilidad,  $p(x)$ , y acumulando la suma de los valores de  $f(x_i)$ . De forma que el valor esperado de  $f$  se puede estimar como:

$$\bar{f} \equiv \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N f(x_i)$$

y según la ley de los grandes números, cuando  $N$  es muy grande,

$$\bar{f} \rightarrow I$$

lo que en terminología estadística significa que  $\bar{f}$ , el resultado del cálculo de Monte Carlo, es un estimador consistente de la integral  $I$ . Esto es válido para cualquier función  $f(x)$  finita y con un número finito de discontinuidades.

Diferentes ejecuciones de una misma simulación de Monte Carlo (con diferentes e independientes secuencias de  $N$  números aleatorios  $x_i$  de  $p(x)$ ) darán diferentes valores de  $\bar{f}$ . Esto implica que el resultado de un cálculo de Monte Carlo está afectado por una incertidumbre estadística similar a la que se encuentra en un experimento. Por tanto, es necesario evaluar apropiadamente la incertidumbre para determinar la precisión de los resultados que se obtengan.

### 1.2.3. Simulación del transporte

Cuando se estudia la simulación del transporte e interacción con la materia de partículas (ya sean fotones o partículas cargadas) el proceso, de forma simplificada, consiste en seguir cada partícula desde que es emitida por una fuente a través de toda su vida hasta que es absorbida, dispersada o escapa del medio. En cada paso, se muestrea aleatoriamente las distribuciones de probabilidad que gobiernan el transporte y la interacción de las partículas.

Cada mecanismo de interacción está caracterizado por una sección eficaz diferencial, que es función de las variables de estado de la partícula que son modificadas en la interacción: normalmente, energía de la partícula y dirección. La distancia media

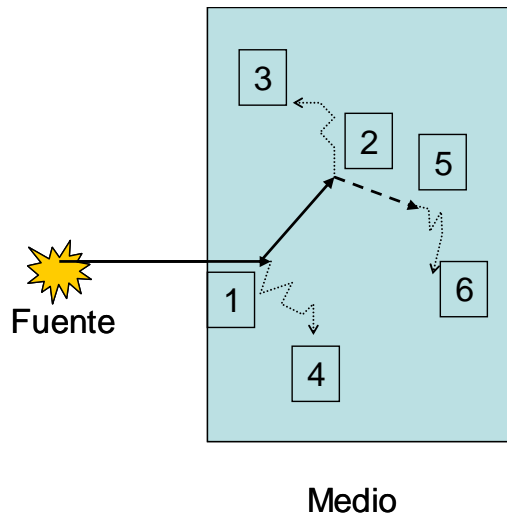


recorrida por una partícula sin sufrir ninguna interacción se denomina recorrido libre medio; su inverso es la probabilidad de interacción total por unidad de longitud. La probabilidad de interacción total es la suma de las secciones eficaces de interacción de todos los mecanismos de interacción posibles.

La figura 1.10 representa la historia de un fotón incidente en un material. En primer lugar se calcula la distancia que recorre el fotón en el material. Para ello se selecciona un número aleatorio entre 0 y 1, y, a partir de la función densidad de probabilidad del recorrido libre, se calcula la distancia recorrida por la partícula en el medio (en la figura hasta el punto 1). A continuación, se sortea el tipo de interacción, de acuerdo con sus probabilidades,  $P_i = \sigma_i / \sigma_T$ , función de las secciones eficaces. En la figura 1.8 la primera interacción corresponde a una dispersión inelástica o Compton. Tras la interacción se genera un electrón secundario cuya simulación se reserva para más adelante. Se continúa sorteando la dirección y energía de la partícula emergente tras la interacción, a partir de la sección eficaz diferencial,

$$P(E_{nueva}; \theta_{nueva}) = \frac{\partial^2 \sigma(E; \Delta E, \theta)}{\partial \Delta E \partial \theta}$$

Con la nueva energía y dirección de la partícula se vuelve a sortear la distancia recorrida por ella, que corresponde al punto 2. Se sortea la interacción, en este caso absorción fotoeléctrica. Tras la interacción se emite un electrón secundario y un fotón X producido tras la reordenación atómica. Después de que finaliza la historia del fotón primario, continúa el sorteo de las trayectorias e interacciones de todas las partículas secundarias generadas, hasta su absorción en el medio.



**Figura 1.10.** Ejemplo de la historia de un fotón cuando atraviesa un medio material. 1. Interacción inelástica. 2. Absorción fotoeléctrica. 3. Absorción del fotoelectrón. 4. Absorción del  $e^-$  dispersado. 5. Absorción fotoeléctrica. 6. Absorción del fotoelectrón.

Cuando los electrones atraviesan la materia pierden energía por dos procesos, básicamente, por colisión inelástica con electrones atómicos y por radiación. Como ya se comentó anteriormente, la simulación de electrones tiene la dificultad adicional de que en el proceso de pérdida de energía pueden suceder cientos de interacciones hasta que el electrón es absorbido por la materia. Berger [12] desarrolló la técnica de “historia condensada” para simular el transporte de partículas cargadas. Con ella, un número grande de sucesos de transporte y colisión se procesan en un solo paso. El efecto acumulativo de cada interacción individual se considera mediante el muestro del cambio de energía, dirección de movimiento y posición de una distribución apropiada que considere la dispersión múltiple.

#### **1.2.4. Códigos de Monte Carlo**

Los códigos de Monte Carlo más utilizados para la simulación de detectores de fotones son MCNP [48], GEANT [49], EGS [50] y PENELOPE [47]. En general, todos son códigos multipropósito que permiten el estudio mediante simulación por Monte Carlo de diferentes problemas de transporte de partículas y fotones. Cada usuario de código define el problema que quiere simular, caracterizado por una serie de materiales con una estructura geométrica concreta, la posición, distribución y energía de fuentes de partículas y fotones. También, dependiendo de cada código, el usuario puede elegir algunas características del cálculo, como la selección de algún método de reducción de la varianza, o el tipo de información obtenida a la salida del cálculo.

MCNP es un código desarrollado por la universidad de California y Los Alamos Nacional Laboratory. La primera versión data de 1977 y desde entonces se han desarrollado 5 nuevas versiones. Puede simular el transporte de electrones fotones y neutrones y la versión x ciertas partículas cargadas. Para fotones, el código contempla la dispersión coherente e incoherente, la posibilidad de emisión fluorescente después de absorción fotoeléctrica y la producción de pares. Para electrones, la desviación angular tras múltiples dispersiones coulombianas, pérdida de energía por colisión y producción de partículas secundarias. Cuenta también con varias técnicas de reducción de varianza.

GEANT4 es un programa desarrollado en el CERN a partir del GEANT3 también del CERN. Consta de una serie de herramientas que se pueden utilizar para simular todo el problema del transporte de partículas en la materia. Los modelos que incorpora GEANT provienen de fuentes diversas que cubren todos los procesos de interacción en un intervalo amplio de energía.

EGSnrc, desarrollado a partir de EGS4, pertenece al National Research Council of Canada. Incluye los mecanismos de interacción de radiación con la materia más importantes. Permite al usuario utilizar diversas bases de datos de secciones eficaces de interacción como EPDL97, XCOM, o cualquier otra definida por el usuario además de la que el código utiliza por defecto.

PENELOPE es un código desarrollado por F. Salvat, J.M. Fernandez-Varea, E Acosta y J. Sampau de la Universidad de Barcelona para la simulación del transporte de electrones y fotones. Este código es distribuido por el NEA Data Bank de la OCDE. Este código es el que se ha utilizado para la realización de los cálculos Monte Carlo en este trabajo.

PENELOPE simula el transporte acoplado de electrones y fotones en una estructura de materiales arbitraria en un amplio rango de energía, desde unos pocos cientos de eV hasta 1 GeV. El transporte de fotones se simula mediante un esquema detallado estándar. Mientras que los electrones y positrones siguen un procedimiento mixto que combina la simulación detallada en las interacciones “fuertes” con una condensada en las interacciones “ligeras”. Un paquete geométrico, llamado PENGEO, permite la generación aleatoria de una serie de electrones-fotones en un sistema de materiales que consiste en cuerpos homogéneos limitados por superficies cuadráticas (planos, esferas, cilindros, etc.). PENELOPE está formado por una serie de subrutinas escritas en FORTRAN, donde se simula el proceso de la interacción, un programa principal controla todo el proceso y la evolución de cada suceso.

Recientemente se ha realizado un ejercicio de intercomparación entre los códigos mas utilizados en espectrometría gamma [51], con el objetivo de conocer las diferencias entre los resultados obtenidos por cada uno en las aplicaciones más frecuentes. Los códigos utilizados han sido:

- GEANT3 [52]: 3 usuarios
- GEANT4 [49]: 5 usuarios
- PENELOPE [47]: 7 usuarios
- MCNPX [48]: 3 usuarios
- GESPECOR [53]: 1 usuario
- EGS4 [50]: 1 usuario
- TRIPOLI-4 [54]: 1 usuario

La comparación fue realizada en términos de un problema teórico, sin referencia a ningún dato experimental. Simplemente se pretendía comparar los resultados de la eficiencia de detección total y la eficiencia fotoeléctrica obtenidos por los diferentes códigos y los diferentes usuarios para tres problemas distintos. Debido a la ausencia de datos experimentales sólo se pretendía testar la mutua compatibilidad de sus resultados y no su comportamiento absoluto.

Después de un primer cálculo en el que se encontraron diferencias de hasta un 10 % entre el valor medio de la eficiencia entre los usuarios de un mismo código, se decidió unificar la medida con una serie de pautas para el cálculo (no utilización de técnicas de reducción de varianza, unificación de la energía de corte, y unificar el valor de algunos parámetros de control, definición más precisa de la eficiencia fotoeléctrica). Con estas modificaciones, en general las diferencias entre los resultados obtenidos con un mismo código eran inferiores al 1 %. Sin embargo, las diferencias entre los distintos códigos siguen siendo muy importantes, de hasta un 10 % para energías bajas (45 keV).

### **1.3. CARACTERÍSTICAS FUNDAMENTALES DE ALGUNOS EMISORES DE POSITRONES**

La lista de radionucleidos emisores de positrones es muy larga. En este trabajo nos hemos centrado en aquellos emisores de positrones que por sus características (periodo de semidesintegración y capacidad de producir moléculas apropiadas para el diagnóstico) son importantes para la medicina nuclear. Estos radionucleidos son:  $^{18}\text{F}$ ,  $^{11}\text{C}$  y  $^{13}\text{N}$ . Además se ha incluido el  $^{22}\text{Na}$ , por su importancia para la calibración de equipos.

---

### 1.3.1. $^{22}\text{Na}$

El radionucleido  $^{22}\text{Na}$  se utiliza para una amplia variedad de aplicaciones. Por ejemplo, es uno de los radionucleidos más utilizados para la calibración de activímetros y otros tipos de detectores de fotones, con él se calibran las cámaras utilizadas en la técnica de medicina nuclear denominada PET.

Se desintegra esencialmente al nivel de energía de 1275 keV de  $^{22}\text{Ne}$  (89,84 % por emisión  $\beta^+$  y 10,11 % por captura electrónica). La transición gamma del nivel excitado al fundamental está muy débilmente convertida, por lo que la desexcitación tiene lugar casi exclusivamente por emisión de un fotón gamma. Una fracción pequeña (0,056 %) se desintegra al nivel fundamental del  $^{22}\text{Ne}$ . Los rayos XK emitidos están por debajo del umbral de energía que puede detectarse con el sistema de medida utilizado (0,848-0,849 keV). El valor del periodo de semidesintegración recomendado es de 2,6027(10) años. El esquema de desintegración [55] del  $^{22}\text{Na}$  se presenta en la figura 1.11 y la tabla 1.1 presenta las principales características de este nucleido.

**Tabla 1. 1.- Principales parámetros del esquema de desintegración del  $^{22}\text{Na}$ .**

Transición	Energía	Probabilidad	Naturaleza		
Captura electrónica	1567,6(4)	0,1011(11)	Permitida	$P_K$ 0,923	$P_L$ 0,077
$\beta^+$	546,6(4)	0,89836(10)	Permitida		
	1820,2(4)	0,056(14)	Prohibida 2º Orden		
$\square$	1274,577(7)	0,99943(14)		$\alpha_T$ $6,8 \cdot 10^{-6}$	

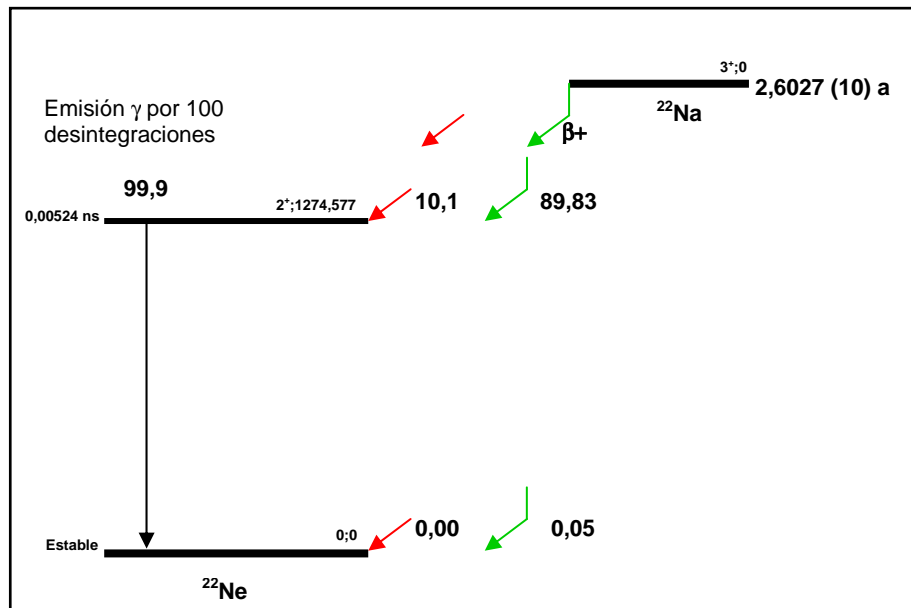


Figura 1. 10. Esquema de Desintegración del  $^{22}\text{Na}$ . Datos tomados de BIPM [1].

Para producir el radionucleido  $^{22}\text{Na}$  se pueden utilizar varias reacciones nucleares. El método seguido depende del acelerador disponible, el campo de aplicación y el nivel de contaminación exigido. Algunas de las reacciones nucleares que producen  $^{22}\text{Na}$  son [56]:

- Mediante la reacción nuclear:  $^{19}\text{F} (\alpha, n) ^{22}\text{Na}$ .
- Mediante la reacción nuclear:  $^{23}\text{Na} (p, x)$ .
- Irradiación de magnesio natural con protones utilizando las reacciones:  
 $^{25}\text{Mg} (p, \alpha) ^{22}\text{Na}$  y  $^{26}\text{Mg} (p, \alpha n)$ .
- Irradiando magnesio natural con deuterones con las reacciones nucleares:  
 $^{24}\text{Mg} (d, \alpha) ^{22}\text{Na}$ ,  $^{25}\text{Mg} (d, \alpha n) ^{22}\text{Na}$  y  $^{26}\text{Mg} (d, \alpha 2n) ^{22}\text{Na}$ .
- La reacción  $^{27}\text{Al} (p, p\alpha n) ^{22}\text{Na}$ .
- La reacción  $^{22}\text{Ne} (p, n) ^{22}\text{Na}$ .

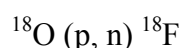
### 1.3.2. $^{18}\text{F}$

El nucleido  $^{18}\text{F}$  se desintegra a  $^{18}\text{O}$  por emisión  $\beta^+$  (96,86%) y por captura electrónica (3,14%) con un periodo de semidesintegración de 1,8288(3) horas [1]. El  $^{18}\text{F}$  unido a un análogo de la glucosa forma la molécula [ $^{18}\text{F}$ ]-fluordesoxiglucosa (FDG) que tiene una extraordinaria importancia en el campo de la medicina nuclear por ser el nucleido más ampliamente utilizado en la técnica diagnóstica conocida como PET (tomografía con emisores de positrones). Su corto período introduce dificultades adicionales en la calibración y excluye de hecho aquellas técnicas que requieren tiempos de medida muy largos. En la tabla 1.2 se presentan las principales características de este nucleido y en la figura 1.12 el esquema de desintegración correspondiente.

**Tabla 1. 2. Principales parámetros del esquema de desintegración del  $^{18}\text{F}$ .**

Transición	Energía	Probabilidad	Naturaleza
Captura electrónica	1655,6 (6)	0,0314 (16)	Permitida
			$P_K$ $P_L$
			0,9267 (48) 0,0733 (48)
$\beta^+$	633,3 (6)	0,9686 (16)	Permitida

La reacción nuclear más utilizada para la producción de  $^{18}\text{F}$  es [57]:



La disolución puede presentar algunas impurezas debidas a las reacciones nucleares siguientes:



Los periodos de semidesintegración de estos radionucleidos son de 64,5 y 9,97 minutos respectivamente.

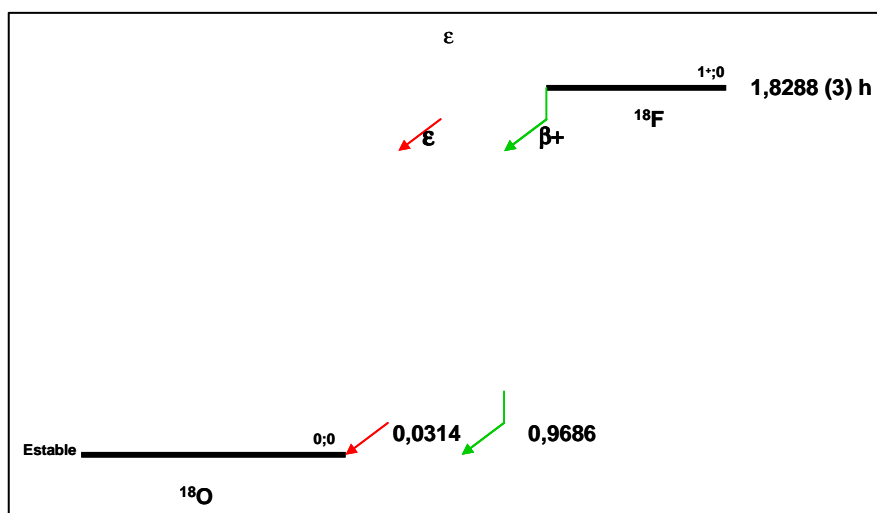


Figura 1. 11. Características fundamentales del esquema de desintegración del  $^{18}\text{F}$ . Datos tomados de BIPM [1].

### 1.3.3. $^{11}\text{C}$

La utilización de compuestos radiofarmacéuticos de  $^{11}\text{C}$  ha ido aumentando en los últimos años para distintas aplicaciones médicas de la técnica PET [58]. El  $^{11}\text{C}$  se desintegra por emisión  $\beta^+$  en un 99,750 (13) % y por captura electrónica en un 0,250 (13) % al nivel fundamental del nucleido estable  $^{11}\text{B}$  con un periodo de semidesintegración de 20,370 (29) minutos [1]. En la tabla 1.3 se presentan las principales características de este nucleido y en la figura 1.13 el esquema de desintegración correspondiente.

Tabla 1. 3.- Principales parámetros del esquema de desintegración del  $^{11}\text{C}$ .

Transición	Energía	Probabilidad	Naturaleza
Captura electrónica	1982,5 (9)	0,00250 (13)	Permitida
			$P_K$ $P_L$
			0,9174 (91) 0,0826 (91)
$\beta^+$	960,5 (9)	0,99750 (13)	Permitida

La reacción nuclear más utilizada para producir  $^{11}\text{C}$  es [57]:



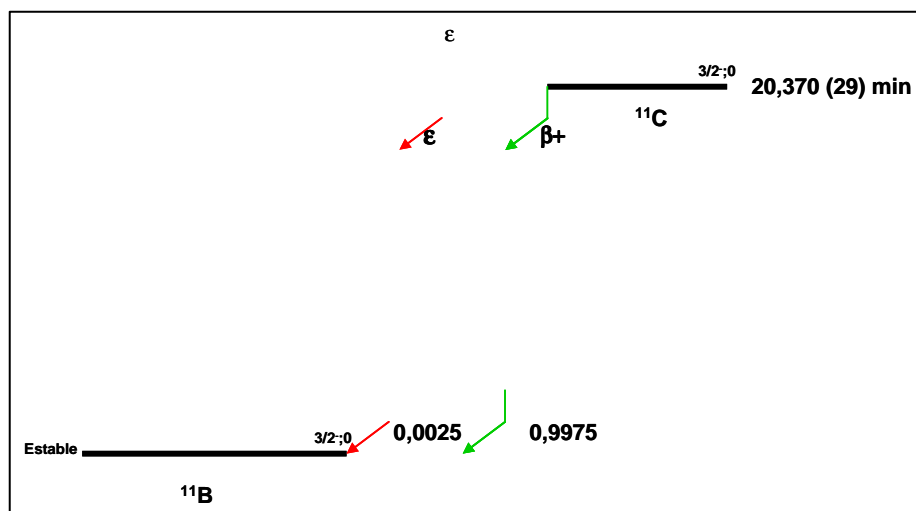
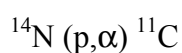


Figura 1. 12. Características fundamentales del esquema de desintegración del  $^{11}\text{C}$ . Datos tomados de BIPM [1]

#### 1.3.4. $^{13}\text{N}$

El  $^{13}\text{N}$  es otro de los emisores de positrones utilizados en PET, en la forma química  $[^{13}\text{N}]\text{NH}_3$  o  $[^{13}\text{N}]$ - amino ácidos [59]. El  $^{13}\text{N}$  se desintegra por emisión  $\beta^+$  en un 99,8 % al nivel fundamental de nucleido estable  $^{13}\text{C}$  con un periodo de semidesintegración de 9,9670 (37) minutos [1]. En la tabla 1.4 se presentan las principales características de este nucleido y en la figura 1.14 el esquema de desintegración correspondiente.

Tabla 1. 4.- Principales parámetros del esquema de desintegración del  $^{13}\text{N}$ .

Transición	Energía	Probabilidad	Naturaleza
Captura electrónica	2220,45 (27)	0,00182 (12)	Permitida $P_K$ $P_L$
			0,923 (7) 0,078 (7)
$\beta^+$	1198,45 (27)	0,99818 (13)	Permitida

El  $^{13}\text{N}$  se produce normalmente por la reacción nuclear [57]:

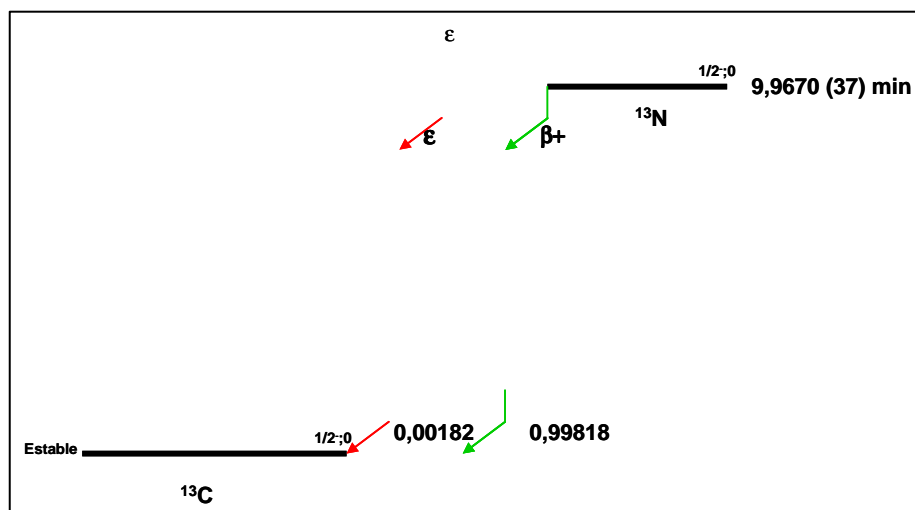
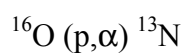
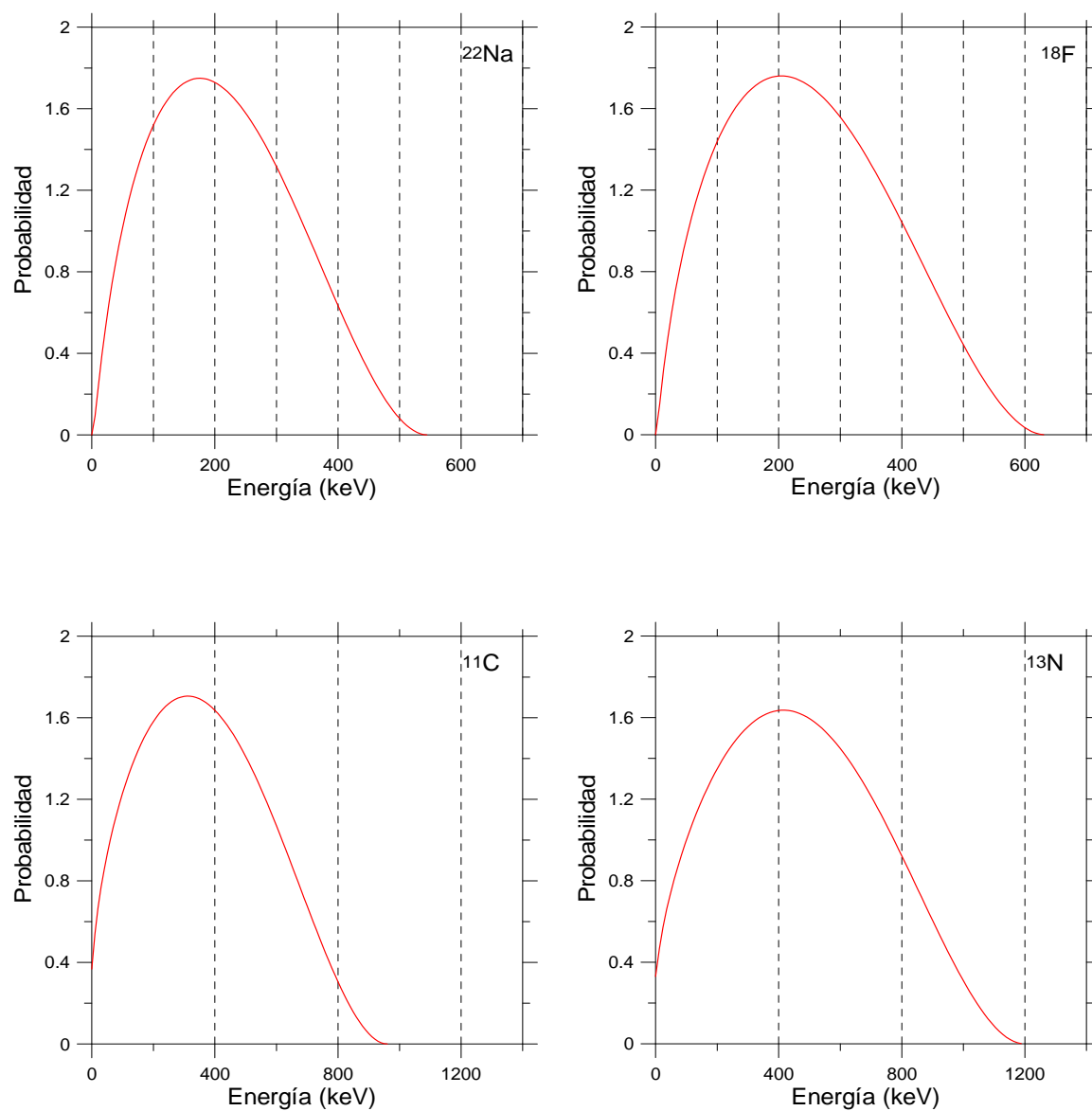


Figura 1. 13. Características fundamentales del esquema de desintegración del  $^{13}\text{N}$ . Datos tomados de BIPM [1].

### 1.3.5. Espectro de energía

La figura 1.15 presenta los espectros de emisión  $\beta^+$  de los radionucleidos  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{18}\text{F}$ ,  $^{11}\text{C}$  y  $^{13}\text{N}$ . La distribución numérica de los respectivos espectros de Fermi se ha obtenido mediante el programa EFFY [60, 61].



**Figura 1. 14. Distribuciones de Fermi para el espectro de energía de las partículas  $\beta^+$  emitidas en la desintegración del radionucleido  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{18}\text{F}$ ,  $^{11}\text{C}$  y  $^{13}\text{N}$  simuladas mediante el programa EFFY.**

## 2. MODELIZACIÓN DE DETECTORES DE GERMANIO PARA SU ESTUDIO MEDIANTE EL MÉTODO DE MONTE CARLO

### 2.1. FUNDAMENTOS

La determinación de la curva de eficiencia de un detector de germanio se realiza normalmente mediante el cálculo de una serie de eficiencias experimentales. Como el número de puntos experimentales disponible es siempre limitado, se hace necesario utilizar alguna técnica numérica para predecir el valor de la eficiencia para un valor cualquiera de la energía. En general se ajusta una forma de línea funcional al conjunto de valores  $\{energía, eficiencia, u(eficiencia)\}$  experimentales, siendo  $u(eficiencia)$  la incertidumbre asociada a la medida de la eficiencia. La forma funcional dependerá del detector que se esté utilizando. Las más comunes son:

- Un polinomio logarítmico en energías y eficiencias. Este tipo de ajustes se puede aplicar en un buen número de casos prácticos, como por ejemplo, para la calibración de detectores de germanio coaxiales [62]. La ecuación más usada es:

$$Log(\varepsilon) = \sum_{j=0}^n a_j (\log(E/E_0))^j$$

Donde  $E_0 = 1$  keV y los coeficientes  $\{a_j\}$  se calculan mediante un proceso de ajuste numérico. Esta función puede proporcionar un buen ajuste para energías mayores de 200 keV.

- Funciones no lineales que pueden describir la eficiencia para un intervalo mayor de energías. Por ejemplo: la función propuesta por McNelles y Campbell [63].

$$\varepsilon(E) = a_1 E^{-a_2} + \sum_{i=2}^4 a_{2i-1} e^{(-a_{2i} E)}$$

Donde  $a_1$ - $a_8$  son parámetros ajustables.

- Funciones específicas que incluyen información sobre secciones eficaces y que se aplican fundamentalmente a detectores de tipo plano. Un ejemplo de este tipo de función es la propuesta por Freeman y Jenkin [64], que depende de las secciones eficaces Fotoeléctrica y Compton del germanio y tiene tres parámetros ajustables. Es la siguiente:

$$\varepsilon(E) = a_1 \left[ \tau(E) + \sigma(E) a_2 e^{-a_3 E} \right]$$

Donde  $\tau(E)$  y  $\sigma(E)$  son las secciones eficaces Fotoeléctrica y Compton respectivamente del germanio y  $a_i$  designa los parámetros de ajuste.

Esta función es moderadamente satisfactoria para detectores pequeños en un rango de energías de entre 500 y 1500 keV. Vidmar [37] ha propuesto una función semi-empírica de este tipo para fuentes extensas en el rango de 4 a 3000 keV. La fórmula tiene en cuenta la autoabsorción en la fuente.

- Alternativamente, puede utilizarse la interpolación numérica por medio de alguna de las técnicas habituales en este campo (Gauss, esplines cúbicos, etc.). La técnica de esplines es apropiada cuando se cuenta con un número muy grande de puntos experimentales para hacer el ajuste [65]. En otro caso es mejor utilizar otra técnica.

Si se exceptúan las funciones que incluyen información sobre las secciones eficaces de interacción, , aunque sea de forma limitada, las técnicas de interpolación numérica no tienen en cuenta las bases físicas que describen la interacción de la radiación con el detector y con todos los medios interpuestos, entre los que se encuentran el soporte de la fuente o la ventana del detector. Esto es el motivo de que no siempre sea posible hacer una interpolación con una incertidumbre baja. Así, por ejemplo, en el rango de energías entre 80 y 120 keV, se produce un cambio en la curvatura de la función que no puede caracterizarse bien experimentalmente. Esto es

debido a que hay muy pocos radionucleidos disponibles cuyas intensidades de emisión en esta región sean suficientemente altas como para permitir la calibración en eficiencias con incertidumbres bajas.

Es aquí donde el método de Monte Carlo puede ser de gran utilidad. La ventaja de su utilización frente a otros métodos reside en que, para las zonas de la curva de eficiencia donde no hay datos experimentales, la extrapolación responde al proceso físico de la interacción de los fotones con el detector y con los materiales interpuestos, a través de las secciones eficaces de interacción y del modelo geométrico que describe al detector.

Aunque la utilización de estos métodos representa una ventaja significativa, no están exentos de problemas y existen una serie de fuentes de incertidumbre en su aplicación. Se mencionan a continuación sus componentes fundamentales:

- La incertidumbre estadística del resultado del cálculo. Este factor ha sido determinante en los primeros cálculos de Monte Carlo debido a las limitaciones en la capacidad de procesamientos de los ordenadores. En la actualidad, con el aumento de las capacidades de los mismos, es menos importante; aunque continúa siendo una limitación para la aplicación del método.
- Incertidumbre en el conocimiento de las secciones eficaces. Si se conocen los valores de las secciones eficaces en el problema que se quiere estudiar, este es evaluable mediante la variación de esas secciones entre sus límites de incertidumbre y por el análisis de la variación en el resultado del cálculo.
- Incertidumbre asociada a los parámetros geométricos del detector. Normalmente el fabricante proporciona junto con el detector los valores nominales de sus principales parámetros geométricos. Sin embargo, debido al proceso complejo de fabricación del detector, estas dimensiones no se conocen con la suficiente precisión [13, 34].
- Relacionado con lo anterior, incertidumbre causada por el hecho de que el cristal de germanio esté inclinado en el interior del criostato. Este efecto fue estudiado por Gasparro et al. [35], quienes concluyeron que para la inclinación esperable el efecto es pequeño (del orden de por miles).

- Incertidumbre causada por la disminución de la eficiencia debida a una recogida de carga incompleta. Este efecto ha sido estudiado por Hernández y El-Daoushy [66] mediante el análisis de la distribución del campo eléctrico en un detector de germanio ultrapuro de tipo pozo. Su conclusión fue que, para este tipo de detectores, la recolección incompleta de carga es la causa principal de discrepancias entre la eficiencia experimental y las predicciones.
- Incertidumbre causada por la subestimación del espesor de la capa muerta de germanio. Con frecuencia este parámetro es ajustado a partir de datos de eficiencia experimental a bajas energías [39, 67-69] o mediante fuentes colimadas [45, 70, 71]. Huy et al. [72] han estudiado el crecimiento de la capa muerta de un detector de germanio con el tiempo. Según sus conclusiones, el espesor de la capa muerta del detector sometido a estudio aumentó desde un valor de 0,35 mm, al comienzo de la operación, hasta un valor de 1,16 mm nueve años después.

Desde el inicio el principal problema, o la principal limitación, ha sido la ausencia del conocimiento suficientemente detallado de las dimensiones reales de las componentes del detector. Así, cuando se hace el cálculo de la respuesta del detector (eficiencia) mediante una simulación de Monte Carlo con los datos nominales suministrados por el fabricante, se observan discrepancias de entorno al 10-20% [36, 45].

### 2.1.1. Métodos de Optimización

En este apartado se presentarán algunos de los procedimientos más utilizados para la optimización del cálculo de la eficiencia de detección mediante métodos de Monte Carlo.

Una forma de optimizar [36, 73] es simplemente escalar los resultados del cálculo de Monte Carlo para minimizar las diferencias entre las eficiencias calculadas y medidas. Se define una eficiencia de referencia,  $S_{ref}$ , a partir de resultados experimentales. Con los parámetros geométricos nominales del detector se calcula la

eficiencia en las mismas condiciones  $\varepsilon_{ref}$ . La eficiencia para cualquier otra condición se obtiene a partir de:

$$\varepsilon_x = \varepsilon_{ref} \frac{S_x}{S_{ref}}$$

Donde  $S_x$  es el resultado de la simulación para el nuevo punto calculada a partir de los parámetros geométricos nominales del detector. Este procedimiento convierte el cálculo de Monte Carlo en un método de interpolación válido en un rango limitado de energía.

Uno de los métodos más utilizados es el ajuste manual de los parámetros del detector. Este comienza con el cálculo de la eficiencia a partir de los valores nominales proporcionados por el fabricante. Generalmente las discrepancias entre los valores así calculados y los valores obtenidos experimentalmente son grandes (en torno al 10 %). A partir de estos valores, y mediante una serie de ajustes por el procedimiento de ensayo y error, los parámetros son optimizados hasta que se obtiene un buen acuerdo entre eficiencias experimentales y calculadas [13, 36].

El método propuesto por Vidmar y Likar [38] consiste en un ajuste, mediante un algoritmo de optimización numérica de los parámetros del detector, a partir de una serie de eficiencias medidas para diferentes energías. A partir estas medidas de eficiencia fotoeléctrica y de los correspondientes resultados de la simulación, el algoritmo de cálculo determina los parámetros óptimos del modelo. El acuerdo entre las eficiencias experimentales y calculadas era de entre un 3-4% una vez optimizados los parámetros del modelo de detector. El algoritmo de cálculo que se utilizó para la minimización es el “método de la dirección”, o Powell’s, descrito por Press [74]. Este método no requiere el conocimiento del gradiente de la función que se va a minimizar.

El procedimiento seguido por la mayor parte de los autores encontrados consiste en la utilización del método de ajuste de parámetros junto con medidas directas de algunos parámetros del detector [13, 26, 33, 40, 42]. Así, por ejemplo, para conocer la posición del cristal dentro del criostato y sus dimensiones internas, se realizan frecuentemente radiografías mediante rayos X [34, 40, 41, 45, 75]. Para conocer con precisión las dimensiones del cristal muchos autores realizan un escáner del detector



mediante fuentes colimadas de distintas energías [13, 23, 24, 45, 70, 71]. Con estos métodos se han llegado a determinar diferencias del orden de unos pocos milímetros entre las dimensiones reales y las especificadas por el fabricante.

Muchos autores justifican en gran medida estas discrepancias por diferencias entre el espesor de la capa muerta nominal y su dimensión real [13, 39, 40, 43, 67, 69], aunque la mayoría de los autores realizan el ajuste del espesor de la capa muerta junto con el ajuste de otros parámetros.

Otro procedimiento para la optimización de algunos parámetros del detector consiste en la medida de fuentes puntuales a varias distancias. Este procedimiento se basa en que, en primera aproximación, la eficiencia de detección de una fuente puntual es proporcional al ángulo sólido de medida [27, 62]. Con este procedimiento se puede optimizar el radio, el espesor del cristal y la distancia entre el cristal y la ventana del detector, eligiendo la posición de las fuentes con el objetivo de aumentar la influencia de los diferentes parámetros. Este método ha sido empleado, entre otros, por Helmer et al. [13] y Hurtado [40] para optimizar la distancia entre la ventana y el cristal.

En el trabajo presentado en esta memoria se ha utilizado un procedimiento mixto:

- Se han realizado una serie de radiografías del detector para determinar el tamaño y posición del cristal.
- Se ha medido la eficiencia con una fuente de  $^{57}\text{Co}$  en varias geometrías para ajustar la distancia entre la ventana y el cristal de germanio a partir de los valores de eficiencia experimental.
- El resto de los parámetros se ajustaron mediante un procedimiento de ensayo y error a partir de la eficiencia obtenida experimentalmente.

## 2.2. APLICACIÓN AL ESTUDIO DE UN DETECTOR DE Ge DE AMPLIO RANGO DE ENERGÍAS. DETERMINACIÓN DE PARÁMETROS ÓPTIMOS.

### 2.2.1. Sistema de medida

El sistema de medida utilizado está formado por un detector de germanio ultrapuro, la cadena electrónica y una serie de fuentes radiactivas de diferentes radionucleidos con un sistema de posicionamiento preciso de las mismas.

El detector utilizado, fabricado por CANBERRA, modelo GX4020, es de tipo coaxial de rango extendido. Este tipo de detectores tiene una capa muerta de germanio en la superficie superior del detector muy fina, del orden de  $\mu\text{m}$ , mientras que los detectores coaxiales convencionales tienen un contacto típicamente de entre 0,3 y 1 mm. Esto permite extender el rango de energías medibles con alta eficiencia hasta 5 keV. La figura 2.1 muestra un dibujo esquemático del detector.

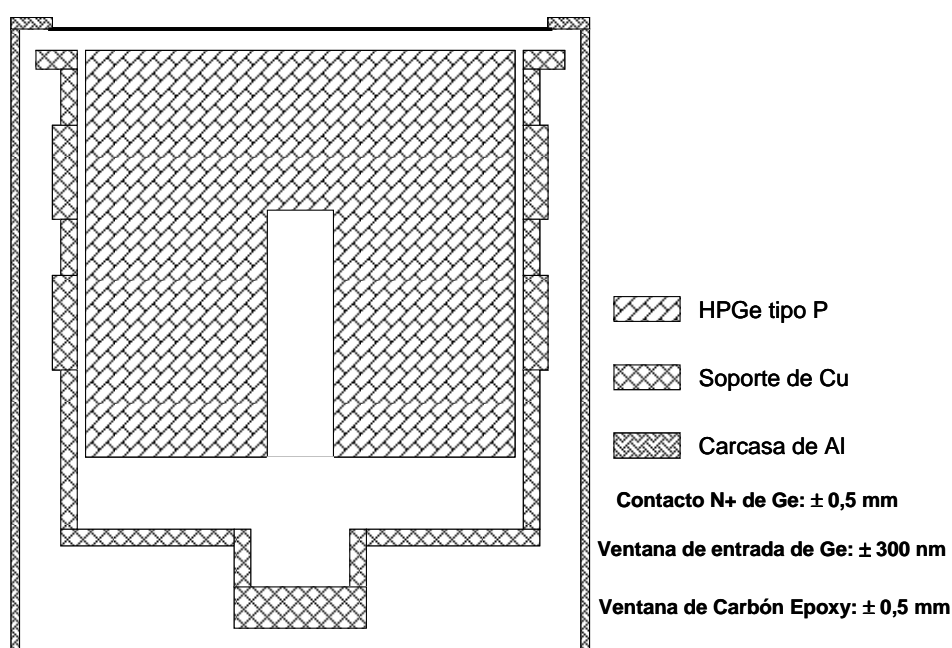


Figura 2. 1. Diagrama del detector de Germanio de rango extendido. El dibujo no está hecho a escala.

El modelo utilizado tiene una ventana de carbón-epoxy de bajo fondo. Para este trabajo nos hemos centrado en la medida de eficiencias de detección de fotones con energías por encima del borde de absorción del Ge (11 keV), ya que es el rango de energías que se utiliza para la calibración en actividad de radionucleidos por esta técnica en el Laboratorio de Radiaciones Ionizantes del CIEMAT. Para energías menores se disponen de otros detectores más apropiados para ese rango como los detectores de germanio planos o Ultra LGe.

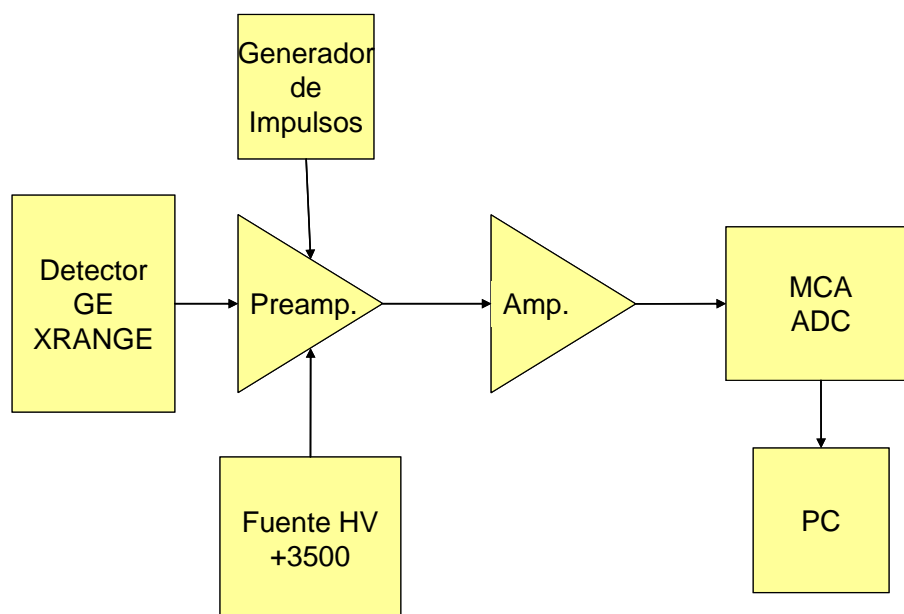
El cristal tiene unas dimensiones de 61 mm de diámetro por 61 mm de profundidad. La distancia entre la superficie del detector y la ventana es de 5 mm. Según las especificaciones del fabricante, la eficiencia relativa respecto a la de un cristal de NaI(Tl) de dimensiones 7,62 x 7,62 cm para fotones de 1,33 MeV es de un 40 %. La resolución del detector, según las especificaciones del fabricante, es de 1,20 keV para fotones de 122 keV y de 2.0 keV para los fotones de 1,33 MeV. Los parámetros geométricos más importantes del detector se muestran en la tabla 2.1.

**Tabla 2. 1. Parámetros geométricos nominales del detector de germanio de rango extendido utilizado en las medidas de eficiencia.**

<b>Parámetro</b>	<b>Valor Nominal</b>
Radio del cristal de Ge	30,5 mm
Longitud del cristal de Ge	61,0 mm
Espesor de la capa muerta superior del cristal Ge	0,3 $\mu$ m
Radio del hueco interno del cristal	5,25 mm
Longitud del hueco interno	49,5 mm
Contacto Ge p+	0,3 mm
Distancia entre el cristal y la ventana del detector	5 mm
Contacto Ge n+	0,5 mm

La cadena electrónica está formada por una fuente de alta tensión BERTAN, un preamplificador de CANBERRA modelo 2002CSL acoplado al detector y refrigerado y un amplificador de espectroscopia ORTEC 671. El último elemento de la cadena es un analizador multicanal (MCA, Multi Channel Analyzer) modelo 7423 de SILENA, que utiliza la técnica de aproximaciones sucesivas y tiene un tiempo muerto fijo de 3  $\mu$ s. La adquisición, visualización y tratamiento previo de los espectros se lleva a cabo mediante

el software Emca2000, del mismo fabricante. La figura 2.2 presenta un esquema del sistema de medida que incluye la cadena electrónica utilizada.



**Figura 2. 2. Montaje experimental para la calibración en eficiencias de un detector de Germanio de rango extendido. Cadena electrónica utilizada.**

El detector y la fuente radiactiva se sitúan en el interior de un blindaje con forma de cubo compuesto por una capa exterior de polietileno de 50 mm de espesor, una capa de Plomo de 50 mm de espesor para proteger el detector de las radiación de fondo del laboratorio, una capa de Cadmio de 3 mm de espesor para absorber los rayos X del plomo ( $K_{\alpha 2}$  de 72,8 keV,  $K_{\alpha 1}$  de 74,7 keV,  $K_{\beta 3}$  de 84,45 keV,  $K_{\beta 1}$  de 84,95 keV y  $K_{\beta 2}$  de 87,3 keV) inducidos por la fuente que se desea medir y, finalmente, una capa interior de Cobre de 1,5 mm de espesor para blindar a su vez los rayos X característicos del Cd. Las dimensiones interiores del cubo son de 80x80x80 cm. La figura 2.3 muestra una imagen del detector y el blindaje.



**Figura 2. 3. Fotografía que muestra el detector de Germanio en el interior del blindaje de plomo.**

Para las medidas se han utilizado 16 fuentes puntuales de diferentes radionucleidos, cuyas principales características aparecen en la tabla 2.2. Estos son:  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{65}\text{Zn}$  y  $^{88}\text{Y}$ . La mayor parte de las fuentes constaban de un único radionucleido y sus actividades oscilaban entre 125 Bq y 330 kBq dependiendo del radionucleido y del origen de la fuente, ya que estas tienen distintas procedencias. En la tabla 2.2 se presenta un resumen con las principales características de las fuentes.

La fuente de  $^{241}\text{Am}$  se preparó sobre una base de acero inoxidable a partir de una disolución calibrada, mediante el método de ángulo sólido bien definido y trazable directamente al BIPM [76].

Las fuentes de  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{85}\text{Sr}$  y  $^{88}\text{Y}$  se han preparado y calibrado en el CIEMAT. El procedimiento de preparación de fuentes puntuales incluye la caracterización gravimétrica por diferencias entre dos pesadas de una serie de alícuotas de la disolución de partida. Esto se realiza pesando un picnómetro que contiene la disolución radiactiva con una balanza microanalítica (Mettler MX-5: alcance máximo 5 g con una incertidumbre máxima de 8  $\mu\text{g}$  para masas inferiores a 3 g), y depositando una o varias gotas sobre una película de papel plástico de polietileno termosellable con un espesor de 75  $\mu\text{m}$ . Se deja secar la muestra hasta que la inspección visual indique que está seca y después se cubre con una película similar y se sella el conjunto térmicamente. Finalmente, se corta un disco circular que rodee a la fuente, centrado en ella, con las dimensiones adecuadas para su colocación en el soporte. Como norma general, se procura que la masa depositada varíe entre 8 y 20 mg; puede excederse este límite cuando la concentración de actividad de la disolución radiactiva lo requiera. El área activa, que se comprueba por medio de autorradiografías tiene aproximadamente 2 mm de diámetro.

La calibración de las fuentes de  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  y  $^{85}\text{Sr}$  se realizó mediante el método  $4\pi\gamma$  con un detector de tipo pozo de NaI(Tl). El procedimiento general utilizado se describirá en el apartado 3.1. La fuente de  $^{60}\text{Co}$  se preparó a partir de una disolución calibrada por el método de centelleo líquido según el procedimiento desarrollado por García-Toraño et al. [77]. La fuente de  $^{88}\text{Y}$  se preparó a partir de una disolución calibrada por el método de coincidencias  $4\pi\beta\text{--}\gamma$  [78]. La fuente de  $^{109}\text{Cd}$  se preparó a partir de una disolución calibrada por el método  $4\pi\gamma$  y por el método de coincidencias  $4\pi\beta\text{--}\gamma$  [78]. Finalmente, las fuentes de  $^{54}\text{Mn}$  y  $^{22}\text{Na}$  se prepararon a partir de disoluciones calibradas anteriormente y trazadas al BIPM [79, 80].

Las fuentes de  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{51}\text{Cr}$  y  $^{65}\text{Zn}$  han sido suministradas por LEA (Laboratoire Etalons d'Activité). Son tres fuentes puntuales con un área activa de 3 mm cada una, en el interior de dos hojas de plástico muy finas que han sido selladas térmicamente. Las fuentes se montan sobre tres anillos de plástico de 3 mm de espesor, con un diámetro interior de 15 mm y exterior de 25 mm. En todos los casos la calibración se realizó con un detector de NaI(Tl) en términos de actividad para la fuente de  $^{65}\text{Zn}$  y en términos de fotones emitidos en  $4\pi$  sr para las fuentes de  $^{139}\text{Ce}$  y  $^{51}\text{Cr}$ .

---

La fuente de  $^{94}\text{Nb}$  y la fuente mixta formada por  $^{154}\text{Eu}$  y por  $^{155}\text{Eu}$  han sido suministradas por el NIST (anteriormente conocido como National Bureau of Standards, de EE UU.). La fuente de  $^{94}\text{Nb}$  se preparó tomando una alícuota pesada de una disolución calibrada mediante el método de coincidencias gamma-gamma. La fuente corresponde al depósito seco en una lámina de poliestireno de aproximadamente  $60\mu\text{m}$  de espesor, cubierta por otra lámina similar, ambas montadas en un anillo de aluminio de 0,8 cm de anchura y diámetro externo 5,5 cm. La fuente mixta se preparó a partir de una disolución depositada en un disco de papel de 0,3 cm de diámetro colocado sobre una lámina de poliestireno de  $60\mu\text{m}$  de espesor cubierta, a su vez, con otra lámina similar. Las dos láminas se montaron en un anillo de aluminio de 21 cm de espesor.

En la tabla 2.2 se presentan las principales características de las fuentes utilizadas para la calibración del detector: nucleido, origen, actividad, incertidumbre de la actividad y fecha de referencia.

**Tabla 2. 2. Fuentes utilizadas para la calibración del detector: nucleido, origen, actividad, incertidumbre de la actividad y fecha de referencia.**

Nucleido	Origen	Actividad (Bq)	Fecha de Referencia
$^{241}\text{Am}$	CIEMAT	3633 (11)	01-12-02
$^{109}\text{Cd}$	CIEMAT	2708 (11)	01-04-07
$^{139}\text{Ce}$	CEA	39324 (295)	03-02-06
$^{57}\text{Co}$	CIEMAT	124,7 (10)	28-06-05
$^{60}\text{Co}$	CIEMAT	2733 (3)	22-06-05
$^{51}\text{Cr}$	CEA	$3,307 \cdot 10^5$ (25)	16-01-06
$^{137}\text{Cs}$	CIEMAT	4345 (43)	28-06-05
$^{152}\text{Eu}$	CIEMAT	1240 (12)	24-06-05
$^{154}\text{Eu}$	NBS	7951 (47)	24-5-06
$^{155}\text{Eu}$	NBS	934,8 (75)	24-5-06
$^{54}\text{Mn}$	CIEMAT	2629 (16)	01-10-03
$^{22}\text{Na}$	CIEMAT	900 (5)	01-03-06
$^{94}\text{Nb}$	NBS	5553 (30)	01-04-70
$^{85}\text{Sr}$	CIEMAT	475,1 (48)	20-12-05
$^{88}\text{Y}$	CIEMAT	3261 (23)	24-10-06
$^{65}\text{Zn}$	CIEMAT	38000 (380)	13-01-06

Para mantener las fuentes a la misma distancia independientemente del origen o forma, se diseñó un conjunto que incluye un posicionador que se ajusta al detector, una

serie de soportes adaptados a la forma de la fuente que encajan en aquel, y anillos de diverso espesor que permiten mantener constante la separación entre la parte activa de la fuente y la ventana del detector. En la siguiente figura se muestra una imagen de los diferentes soportes.



**Figura 2. 4. Fotografía que muestra los distintos tipos de fuentes utilizadas, los diferentes soportes adaptados a la forma de las fuentes y el posicionador.**

Las fuentes se midieron durante el tiempo necesario para que el área del pico de absorción total de energía se pudiera determinar con una incertidumbre estadística menor de 1 % para la mayor parte de los picos. Los espectros se analizaron con el software GRILS que forma parte del paquete de software del OIEA conocido como GANAAS (Gamma, Activity, and Neutron Activation Analysis System) [81]. El programa utiliza un algoritmo iterativo de ajuste no lineal mediante mínimos cuadrados. El ajuste del fondo del espectro se puede realizar por medio de dos procedimientos: por

---



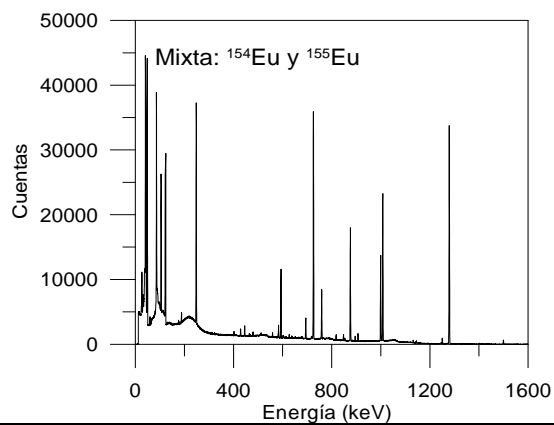
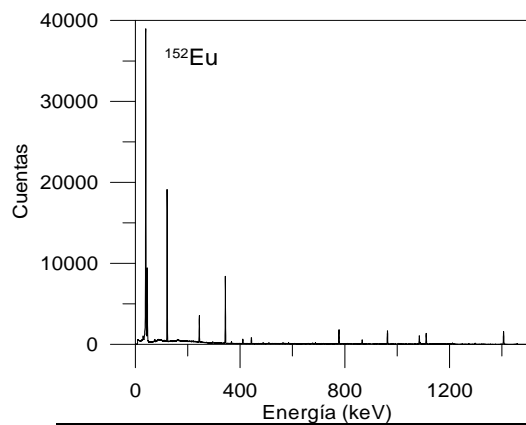
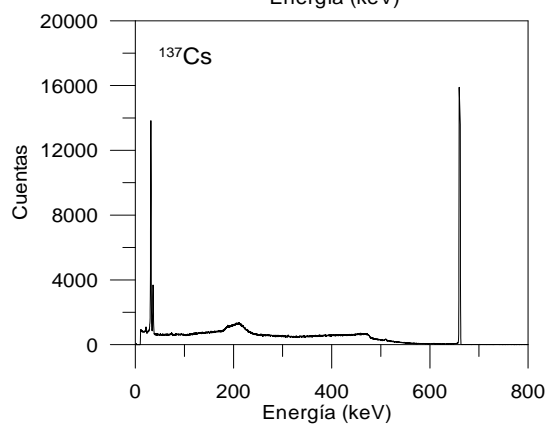
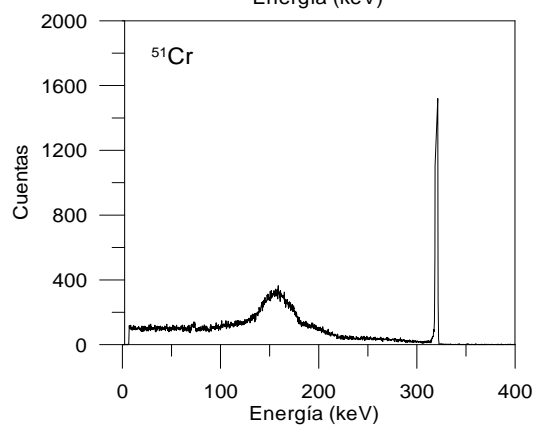
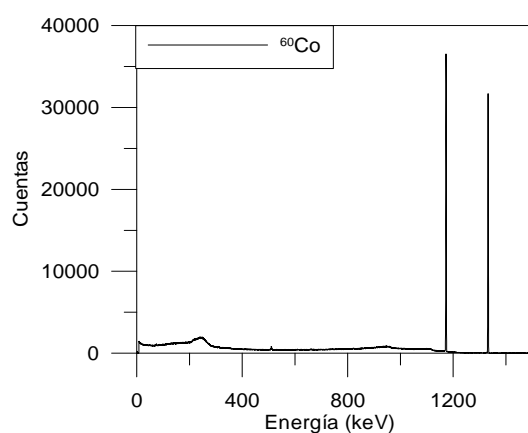
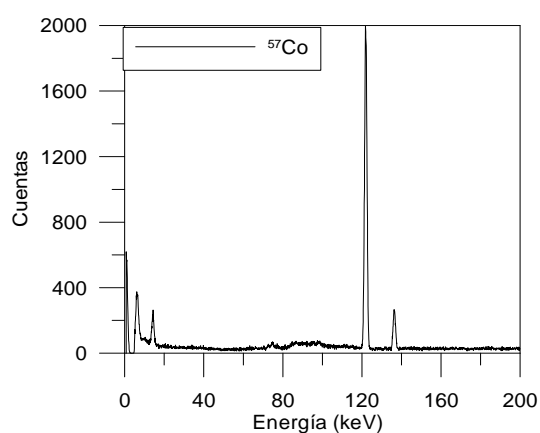
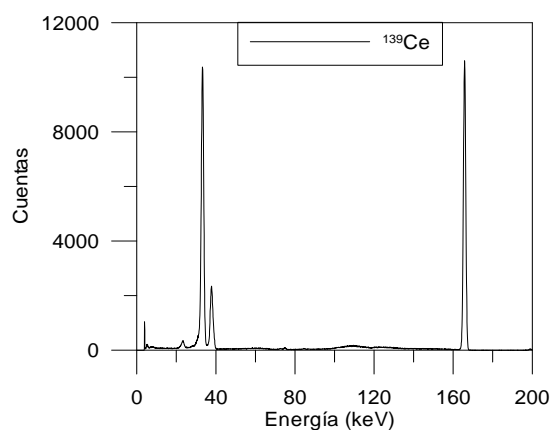
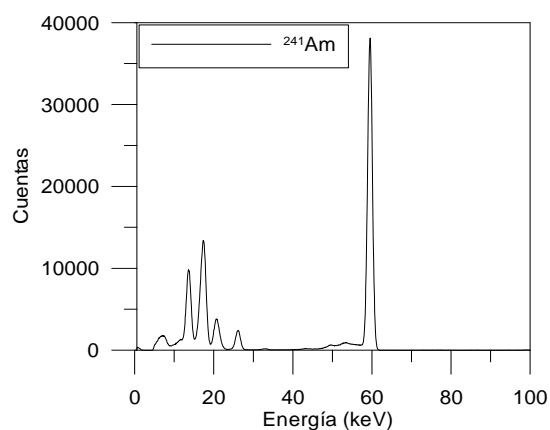
un ajuste polinomial o mediante un filtro. Este último ha sido el procedimiento seguido para la determinación del fondo. El programa es muy interactivo de manera que el usuario tiene la posibilidad de modificar los parámetros del análisis hasta obtener un ajuste óptimo. Por ese motivo está especialmente recomendado para el análisis de espectros especialmente complejos. Otro motivo para la elección de este programa de análisis es que el cálculo de la incertidumbre del área de pico de absorción total de energía es muy consistente.

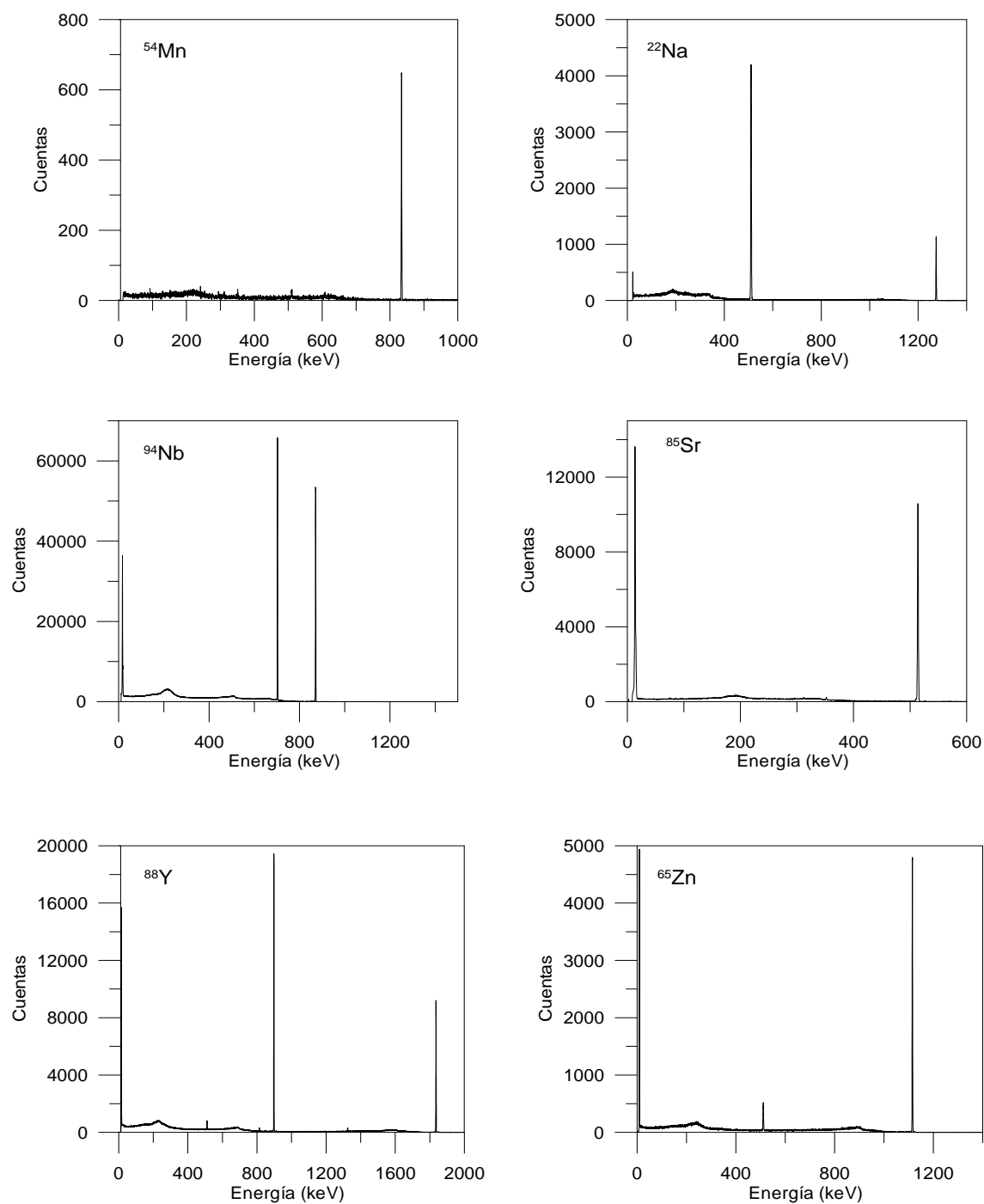
### **2.2.2. Determinación de las eficiencias experimentales**

La determinación de la eficiencia experimental consta de los siguientes pasos:

- La medida de un conjunto de fuentes de referencia cuya actividad es conocida.
- El cálculo de la eficiencia total de recuento, basándose solamente en las medidas obtenidas con emisores gamma monoenergéticos, o aquellos cuyas líneas gamma tienen una energía muy similar.
- La determinación del área del fotopico correspondiente a una transición gamma cuya energía y probabilidad de emisión son conocidas.
- El cálculo de la eficiencia de recuento para el pico de absorción total.
- La corrección, si procede, de la curva anterior con el factor de suma por coincidencia y el nuevo ajuste de la función empírica.

Todas las fuentes se han medido a una distancia de  $15,8 \pm 0,01$  cm del detector, es decir desde el centro de la fuente hasta la ventana de carbón epoxy. La distancia seleccionada es la máxima que permite el dispositivo experimental disponible en el laboratorio del LMRI del CIEMAT. Con ello se consigue minimizar las correcciones por suma en coincidencia, que a esta distancia son menores del 1 %. En la figura 2.5 se presentan los espectros medidos de las 14 fuentes consideradas.





**Figura 2. 5. Espectros obtenidos con el detector de Germanio de rango extendido. Corresponden a 14 fuentes puntuales de 15 radionucleidos distintos situadas, aproximadamente, a 15 cm del detector. Las actividades de las fuentes figuran en la tabla 2.2.**

En primer lugar se ha determinado la curva de **eficiencia total de detección**. Para ello, del conjunto de fuentes medidas se seleccionaron aquellas que emiten radiación gamma monoenergética. La mayor parte de los radionucleidos emiten rayos X además del fotón gamma. Estos rayos X provienen de la desexcitación del átomo después de una desintegración por captura o de la conversión interna de una transición gamma. La contribución de los rayos X de baja energía se puede restar en la parte de baja del espectro, debido a que para estas energías la mayor parte de los fotones se detectan en el pico fotoeléctrico; por lo que todos los impulsos detectados formarán parte del pico de absorción total, sin que produzca una contribución compton significativa. Para obtener el área total del espectro, se realiza la extrapolación hasta energía cero [62].

Para radionucleidos que emiten dos fotones gamma con energías cercanas se puede asignar una emisión de energía igual a la media de los dos fotones gamma con una probabilidad de emisión que es suma de las probabilidades de emisión individuales.

**La eficiencia total** para un nucleido emisor gamma monoenergético viene dada por:

$$\varepsilon_t(E) = \frac{N}{AP_\gamma t}$$

donde:

$N$  es el área total debida a la línea gamma cuya energía es E, obtenida por integración de todo el espectro medido, extrapolado hasta el origen de energías y descontado el fondo. Si existiera una contribución significativa de Rayos X, se procederá a estimar el área correspondiente por integración simple y a descontarla.

$t$  es el tiempo de medida del espectro.

$P_\gamma$  es la probabilidad de emisión gamma para la línea medida.

$A$  es la actividad de la fuente de referencia en el momento de la medida.

La incertidumbre típica combinada del valor de la eficiencia total se calcula de acuerdo con la expresión:

$$\frac{uc(\epsilon_t(E))}{\epsilon_t(E)} = \sqrt{\left(\frac{u(N)}{N}\right)^2 + \left(\frac{u(t)}{t}\right)^2 + \left(\frac{u(P_\gamma)}{P_\gamma}\right)^2 + \left(\frac{u(A)}{A}\right)^2}$$

Donde:

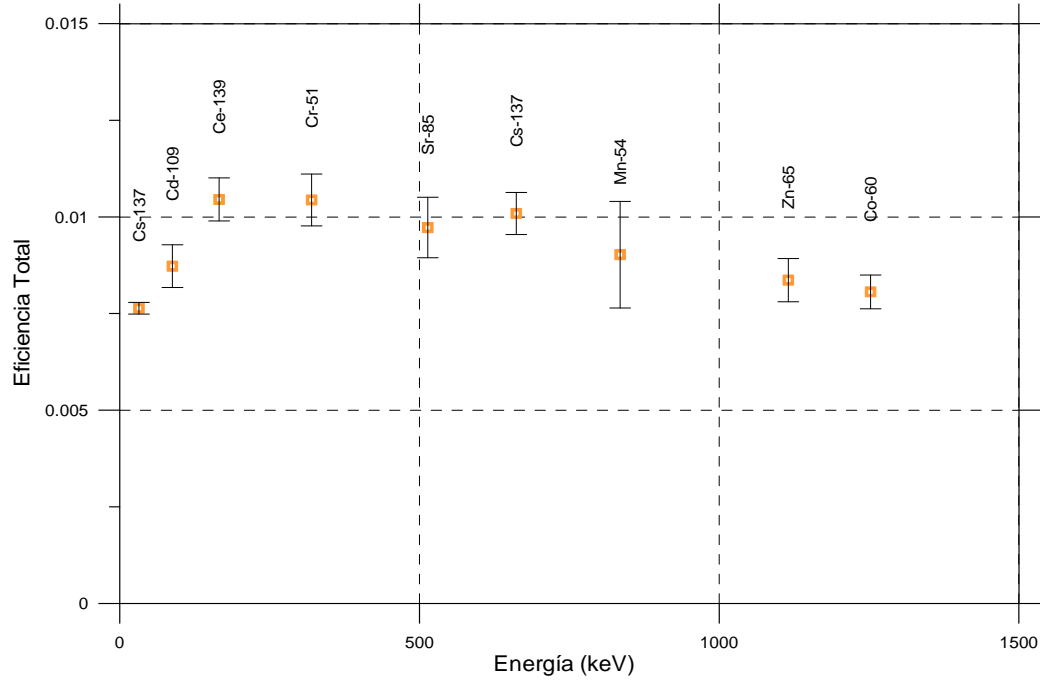
$u(N)$  es la incertidumbre del recuento que, en las condiciones normales de medida, viene dada por la raíz cuadrada del número de sucesos contados, dado que, al medir fuentes de referencia, la contribución de incertidumbre debida al fondo es despreciable.

$u(t)$  se considera despreciable frente al resto de componentes, por tratarse de medidas de larga duración.

$u(P_\gamma)$  se toma directamente de la referencia reduciéndola, si es necesario, al factor de cobertura de  $k=1$ .

$u(A)$  se toma del certificado de calibración de la fuente reduciéndola, si es necesario, al factor de cobertura de  $k=1$ .

El conjunto de valores {energía, eficiencia} define la curva de eficiencia total del detector. Si se precisan valores de la eficiencia que no han sido medidos directamente, se interpolará en el conjunto de puntos medidos o se ajustará un polinomio semilogarítmico a los datos. La figura 2.6 muestra la curva de eficiencia total obtenida a partir de las medidas experimentales de los radionucleidos:  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{85}\text{Sr}$  y  $^{65}\text{Zn}$ .



**Figura 2. 6. Eficiencia total experimental calculada en el intervalo de energías 30-1300 keV para el detector de germanio de rango extendido. Todas las fuentes se situaron a 15 cm.**

El valor de la eficiencia para el pico de absorción total o eficiencia fotoeléctrica viene dado por la expresión:

$$\varepsilon(E) = \frac{N}{AP_{\gamma}t} f_c f_a f_f$$

donde:

$N$  es el número de cuentas neto en el fotopico considerado.

$P_{\gamma}$  es la probabilidad de emisión del fotón gamma.

$t$  es el tiempo de medida de la muestra.

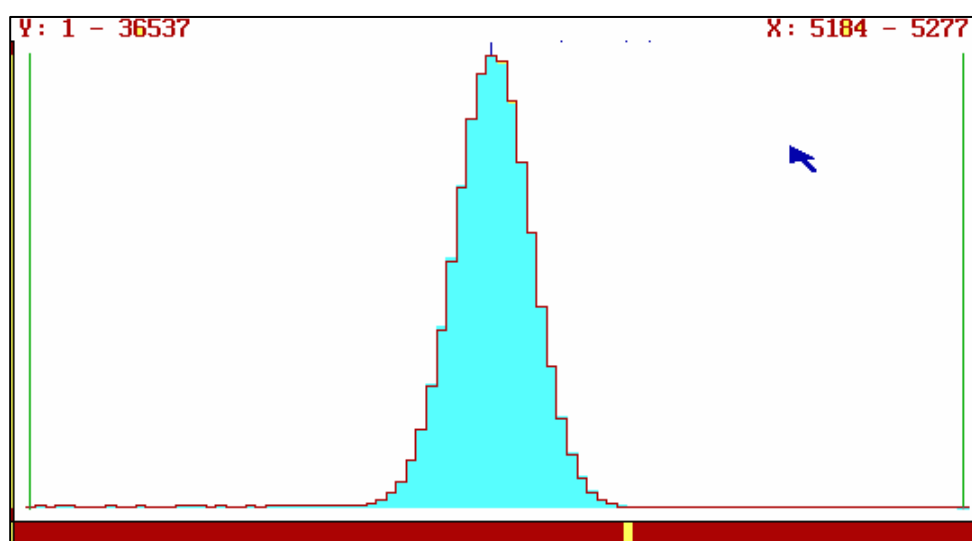
$f_c$  es el factor de corrección por suma en coincidencia, si aplica.

$f_a$  es el factor de corrección por apilamiento de impulsos, si aplica.

$f_f$  es el factor de atenuación en la fuentes, si aplica.

Los valores de las magnitudes precedentes se obtienen de la siguiente manera:

El número neto de cuentas  $N$  que corresponde al fotopico se obtiene mediante el cálculo con el programa de ajuste de espectros GRILS proporcionado por el Organismo Internacional de Energía Atómica, que ha sido extensivamente validado en comparaciones internacionales. La figura 2.7 muestra el ajuste realizado a las fuentes de  $^{60}\text{Co}$  para la determinación del área del pico fotoeléctrico o área de absorción total de energía.



**Figura 2. 7. Ejemplo de ajuste del espectro para la determinación del área del fotopico. Ajuste de la línea de 1173,2 kev de  $^{60}\text{Co}$ .**

Los datos nucleares utilizados se han tomado de las tablas publicadas por el Buró Internacional de Pesas y Medidas [1] resultado de la evaluación realizada en el contexto de una cooperación internacional. Los datos no disponibles en las tablas del Buró se han tomado del Evaluated Nuclear Structure Data File [55]. En la tabla 2.3 se presentan los principales datos nucleares utilizados con sus incertidumbres.

**Tabla 2. 3. Datos Nucleares de los radionucleidos utilizados en la calibración del detector: nucleido, periodo de semidesintegración, energía del fotón emitido y probabilidad de emisión.**

Nucleido	$T_{1/2}$	E (keV)	$P_e$ (u $P_e$ )
<sup>241</sup> Am	432,6 (6) a	26,34 59,54	0,0240 (3) 0,3578 (9)
<sup>109</sup> Cd	461,4 (12) d	88,03	0,03626 (26)
<sup>139</sup> Ce	137,641 (20) d	165,86 $X_{K\alpha}$ 33,3	0,7990 (4) 0,6370 (54)
<sup>57</sup> Co	5,2710 (8) a	14,41 122,06 136,47	0,0915 (17) 0,8551 (6) 0,1071 (15)
<sup>60</sup> Co	5,2710 (8) a	1173,23 1332,49	0,9985 (3) 0,999826 (6)
<sup>51</sup> Cr	27,703 (3) d	320,08	0,0987 (5)
<sup>137</sup> Cs	30,05 (8) a	661,66 $X_{K\alpha}$ 32,06	0,8499 (20) 0,0554 (8)
<sup>152</sup> Eu	13,522 (16) a	121,78 344,28 778,90 1408,01	0,2841 (13) 0,2659 (12) 0,1297 (6) 0,2085 (8)
<sup>154</sup> Eu	8,601 (4) a	1274,43 1596,48	0,349 (3) 0,01783 (17)
<sup>155</sup> Eu	4,753 (14) a	86,55 105,31	0,307 (3) 0,211 (6)
<sup>54</sup> Mn	312,13 (3) d	834,83	0,999746 (11)
<sup>22</sup> Na	2,6027 (10) a	1274,54	0,99940 (14)
<sup>94</sup> Nb	20000 (2400) a	702,60 871,09	0,979 (20) 0,999 (1)
<sup>85</sup> Sr	64,850 (7) d	514,00 $X_K$ 13,62	0,985 (4) 0,5917 (35)
<sup>88</sup> Y	106,626 (21) d	898,04 1836,05	0,9390 (23) 0,9932 (3)
<sup>65</sup> Zn	244,01 (9) d	1115,20	0,5022 (11)

El tiempo de medida  $t$  es determinado directamente por el convertidor analógico-digital, el cual posee un oscilador interno de 100 MHz.

El factor de corrección por suma en coincidencia  $fc$  es relevante solo cuando la línea gamma que se observa se emite en coincidencia con alguna otra y la eficiencia de recuento es relativamente alta. El efecto es despreciable y, por tanto,  $fc = 1$  en todos los demás casos. Su origen es el siguiente: cuando en la desexcitación de un nucleido se emiten simultáneamente y en cascada un cierto número de fotones gamma, existe una



probabilidad de que algunos de ellos alcancen simultáneamente el detector y sean registrados como un impulso coincidente. Como consecuencia, algunos picos gamma ven incrementada su área a causa de la contribución sumada de varios sucesos individuales mientras que, a causa del mismo fenómeno, se pierden impulsos en los picos que corresponden a cada una de las transiciones individuales que se suman. El factor de corrección por suma en coincidencia  $f_c$  es el que relaciona el área del pico efectivamente observada ( $N_o$ ) con el área que tendría de no existir el proceso de suma en coincidencia ( $N$ ):

$$f_c = \frac{N}{N_o}$$

Su valor puede ser mayor o menor que la unidad, depende del balance entre el número de impulsos perdidos y el número de impulsos ganados para una línea gamma determinada.

El fenómeno de suma en coincidencia depende directamente de la eficiencia de recuento, por lo que puede considerarse despreciable a efectos prácticos (es decir, comparada con otros factores de corrección) si la eficiencia de detección es baja (del orden del 1%). Cuando la eficiencia supere este valor, se podrá calcular el factor de corrección  $f_c$  con el programa de cálculo ETNA (Efficiency Transfer for Nuclide Activity measurements) [82], un software desarrollado en el LNHB, CEA, para el cálculo tanto de transferencias de eficiencias a otras geometría como a correcciones por suma en coincidencia. La corrección total para una línea gamma se calcula como el producto de multiplicar la corrección parcial con otras líneas gamma por la efectuada con líneas de rayos X. La aproximación seguida es de primer orden, ya que sólo se permiten dobles coincidencias. Si el factor resultante es superior en valor relativo al 0,5%, se entenderá que es preciso realizar la corrección y se procede de la siguiente manera: Se obtiene una tabla de factores de corrección para cada uno de los valores experimentales utilizados en la determinación de la curva de eficiencias que estén afectados por el fenómeno de la suma en coincidencia. Para ello se utiliza el programa ETNA, introduciendo los valores de eficiencia total medidos y los de eficiencia del pico de absorción total calculados.

Los valores de eficiencia afectados por suma en coincidencia se modificarán de acuerdo con los factores de corrección.

Su valor se obtiene a partir de la curva de eficiencia total y de la de eficiencia del pico de absorción total preliminar. Este factor se ha calculado para los siguientes radionucleidos:  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{94}\text{Nb}$  y  $^{88}\text{Y}$ .

El factor de corrección por apilamiento de impulsos,  $f_a$ , representa la corrección necesaria debida al tiempo muerto del sistema de medida. Habitualmente, el reloj de tiempo vivo del sistema realiza esta corrección automáticamente y, por lo tanto,  $f_a = 1$ . Sin embargo, estas correcciones no son fiables cuando el tiempo muerto del sistema supera un 5%, por lo que en ese caso debe calcularse el factor de corrección. Su cálculo se realiza mediante un generador de impulsos cuya salida se inyecta a la entrada del preamplificador. Conocido el número de impulsos emitido por el generador ( $N_p$ ) en un tiempo dado y el área del pico correspondiente en el espectro de energías ( $N_{pc}$ ), se obtiene el factor de corrección por apilamiento de este modo:

$$f_a = \frac{N_p}{N_{pc}}$$

En general las tasas de recuento han sido bajas; por ello no se han realizado correcciones por tiempo muerto adicionales a las que se realizan con el tiempo vivo del reloj del ADC.

Se ha corregido por atenuación en la fuente de polietileno la línea gamma del  $^{57}\text{Co}$  de 14,41 keV, los rayos X de 13,62 keV del  $^{85}\text{Sr}$  de 32,0 keV de  $^{137}\text{Cs}$  y de 33,2 keV de  $^{139}\text{Ce}$ . No se ha aplicado corrección a la fuente de  $^{241}\text{Am}$  por ser una fuente desnuda. Con el programa XCOM [5] se han obtenido los coeficientes de atenuación lineal del polietileno de la fuente ( $\mu$ ). La corrección por atenuación en la fuente se calcula según la siguiente expresión:

$$f_f = e^{\mu z}$$

Donde  $z$  es el espesor de la fuente.

Las correcciones han sido de 1,006, 1,007, 1,0019 y 1,0019 respectivamente. No se han calculado correcciones para más energías porque el error resultante de no aplicar

la corrección es muy pequeño en comparación con las incertidumbres asociadas a otros parámetros experimentales.

En la tabla 2.4 se presentan los resultados obtenidos para el cálculo de la eficiencia experimental para todas las fuentes consideradas.

**Tabla 2. 4. Eficiencia fotoeléctrica del detector de Germanio de rango extendido experimental y calculada en el intervalo de energía 14-1830 keV .**

Nucleido	E (keV)	Eficiencia Experimental $\times 10^{-3}$	Eficiencia Calculada $\times 10^{-3}$	(Exp-Cal)/Exp %
<sup>241</sup> Am	26,34	7,400 (111)	7,396 (49)	0,054
	59,54	7,917 (35)	7,975 (69)	-0,73
<sup>109</sup> Cd	88,03	7,623 (66)	7,648 (51)	-0,33
<sup>139</sup> Ce	165,86	7,836 (90)	7,706 (47)	1,65
	X <sub>K<math>\alpha</math></sub> 33,3	6,258 (50)	6,311 (35)	-0,85
<sup>57</sup> Co	14,41	5,792 (232)	5,763 (27)	0,50
	122,06	7,178 (75)	7,140 (71)	0,53
	136,47	6,980 (122)	6,903 (27)	1,10
<sup>60</sup> Co	1173,23	1,362 (4)	1,360 (11)	0,15
	1332,49	1,227 (2)	1,230 (11)	-0,22
<sup>51</sup> Cr	320,08	3,951 (33)	3,918 (39)	0,84
<sup>137</sup> Cs	661,66	7,641 (122)	7,677 (46)	-0,48
	X <sub>K<math>\alpha</math></sub> 32,06	2,095 (25)	2,115 (15)	-0,94
<sup>152</sup> Eu	121,78	7,202 (83)	7,140 (71)	0,85
	344,28	3,692 (59)	3,662 (39)	0,80
	778,90	1,908 (30)	1,874 (19)	1,78
	1408,01	1,191 (18)	1,174 (12)	1,44
<sup>154</sup> Eu	1274,43	1,269 (8)	1,275 (11)	-0,47
	1596,48	1,090 (15)	1,071 (16)	1,72
<sup>155</sup> Eu	86,55	7,689 (108)	7,684 (23)	0,069
	105,31	7,333 (103)	7,430 (31)	-1,32
<sup>54</sup> Mn	834,83	1,784 (13)	1,772 (15)	0,67
<sup>22</sup> Na	1274,54	1,270 (12)	1,275 (11)	-0,37
<sup>94</sup> Nb	702,60	2,030 (43)	2,023 (13)	0,34
	871,09	1,687 (25)	1,704 (11)	-1,01
<sup>85</sup> Sr	514,00	5,437 (217)	5,449 (37)	-0,22
	X <sub>K</sub> 13,62	2,591 (31)	2,591 (16)	0,019
<sup>88</sup> Y	898,04	1,663 (20)	1,668 (10)	-0,30
	1836,05	0,936 (4)	0,940 (10)	-0,44
<sup>65</sup> Zn	1115,20	1,392 (17)	1,406 (12)	-1,01

### **Incertidumbre de la eficiencia para el pico de absorción total o eficiencia fotoeléctrica experimental.**

Se calcula como la suma cuadrática de las tres principales fuentes de incertidumbre: la de actividad, la del área del pico fotoeléctrico y la debida a la incertidumbre en los datos nucleares. La incertidumbre de la actividad se ha tomado de los datos de los certificados de calibración de cada fuente. La incertidumbre en el área se calcula mediante el programa GRILS. Por último, la incertidumbre debida a los datos nucleares tiene dos componentes fundamentales: la de las probabilidades de emisión y la contribución del periodo. Se ha seguido una aproximación para el cálculo de la incertidumbre en el decaimiento.

Si se aplica la ley de propagación de incertidumbres a la expresión de la eficiencia de recuento, se obtiene que la incertidumbre típica combinada para cada valor de la eficiencia valdrá:

$$\frac{uc(\varepsilon)}{\varepsilon} = \sqrt{\left(\frac{u(N)}{N}\right)^2 + \left(\frac{u(A)}{A}\right)^2 + \left(\frac{u(P_\gamma)}{P_\gamma}\right)^2 + \left(\frac{u(t)}{t}\right)^2 + \left(\frac{u(f_c)}{f_c}\right)^2 + \left(\frac{u(f_a)}{f_a}\right)^2}$$

La forma de evaluación de las distintas componentes de incertidumbre es la siguiente:

- $u(N)$ : Proporcionado por el programa de ajuste (GANAAS) a partir del cálculo de la matriz de covarianzas.
- $u(A)$ : A partir del certificado de calibración, para  $k=1$ .
- $u(P_\gamma)$ : A partir de la tabla de datos de referencia,  $k=1$
- $u(t)$ : Calibración de la base de tiempos. Normalmente su contribución es despreciable.
- $u(f_c)$ : Cálculos con el programa ETNA, modificando el valor de la eficiencia

$$u(f_c) = \frac{f_c(\varepsilon + u(\varepsilon)) - f_c(\varepsilon)}{u(\varepsilon)}$$

- $u(f_a)$ : A partir de la expresión:

$$u(f_a) = \sqrt{\left(\frac{u(Np)}{Np}\right)^2 + \left(\frac{u(Npc)}{Npc}\right)^2}$$

Donde,  $u(Npc)$  es el valor proporcionado por GANAAS y  $u(Np)$  depende de las características del generador de impulsos.

### 2.2.3. Determinación de la eficiencia mediante la Simulación Monte Carlo

La simulación se ha hecho con el código PENELOPE y con los programas PENMAIN y PENGEOM [47].

PENMAIN es un programa principal de PENELOPE que realiza la simulación de la interacción de los fotones y electrones cuando la estructura geométrica de los materiales que se van a simular es compleja. La geometría de los materiales del sistema se realiza con PENGEOM. PENMAIN es un programa muy flexible que puede resolver un conjunto muy amplio de problemas prácticos. Su operación se controla a través de la definición de una serie de parámetros en el fichero de entrada. Estos son:

- Parámetros para definir la fuente: tamaño y posición de la fuente. Dirección (es decir, ángulo de apertura y ángulos directores) y tipo de las partículas primarias.
- Parámetros que controlan la ejecución, como la energía de absorción en los distintos materiales, parámetros de dispersión elástica, corte de la pérdida de energía para dispersión inelástica y emisión bremsstrahlung.
- Parámetros relacionados con los datos de salidas que se pueden obtener del programa (en relación con las partículas emergentes, detectores de impacto o detectores de energía depositada) y las propiedades de la ejecución del programa.

La simulación práctica del transporte de la radiación en un medio material conlleva dos tipos de operaciones: la parte física de la simulación (determinación del camino recorrido por una partícula en un material hasta la siguiente interacción, el muestreo aleatorio del tipo de interacción, etc.) y la parte geométrica (desplazamiento espacial, cruce de una interfase entre dos materiales). En el caso de un sistema de

materiales dispuestos con una geometría compleja, la parte de la simulación geométrica puede llevarse una fracción importante del tiempo de ejecución. Normalmente esta operación se realiza mediante una subrutina cuya función es seguir la simulación de la historia de una partícula en el sistema de materiales, y determinar el medio activo y los cambios cuando una partícula cruza una interfase. La descripción del cruce de una interfase es muy simple en PENGEO: cuando una partícula alcanza una interfase, su trayectoria se detiene justo antes de entrar en el nuevo medio y se reinicia una vez entrado en este. Con PENGEO se describe el sistema de materiales mediante la definición de una serie de cuerpos limitados por superficies cuadráticas. Para aumentar la velocidad de ejecución, los cuerpos del sistema de materiales se pueden agrupar en módulos (volúmenes limitados por superficies cuadráticas que contienen uno o varios cuerpos); los módulos pueden formar parte de otros módulos, etc. Esta estructura modular permite reducir el trabajo de la subrutina geométrica y es más efectiva cuando la complejidad del sistema aumenta.

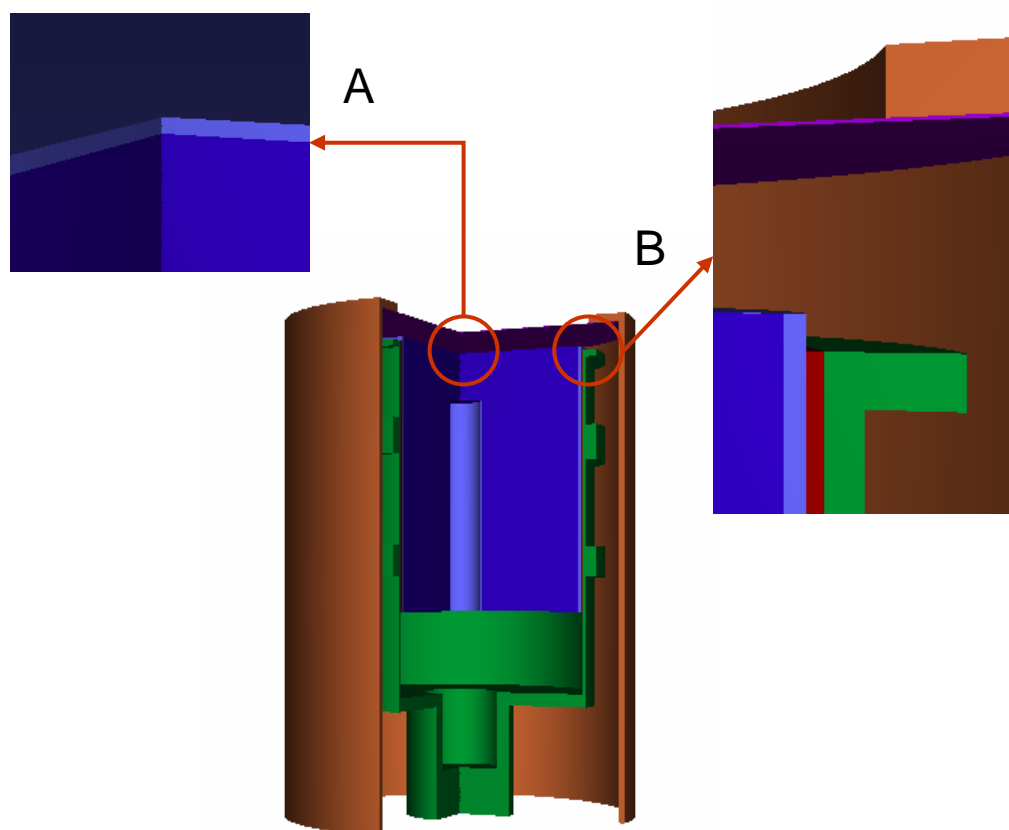
Se ha simulado con el mayor detalle posible todas las partes del detector: el cristal de germanio, las distintas capas muertas superficiales del detector, el reflector, el soporte de cobre, la cubierta exterior de aluminio, la ventana de carbón epoxy, el aire, y el blindaje de cadmio, cobre y plomo. La tabla 2.5 resume la composición y densidad de cada uno de los materiales considerados.

**Tabla 2. 5. Composición de los materiales, densidad y dimensiones de los elementos que forman el detector.**

<b>Elemento</b>	<b>Composición elemental (átomos/molécula)</b>	<b>Densidad (g/cm<sup>3</sup>)</b>	<b>Dimensiones (cm)</b>
Cristal de Ge	Ge	5,323	Diámetro: 6,1 Altura: 6,1
Ventana (carbón epoxy)	H (19), C (18), O (3)	1,85	Espesor: 0,05
Reflector	In	7,31	Espesor: 0,05
Soporte del cristal	Cu	8,96	Espesor: 0,1- 0,35
Cubierta exterior	Al	2,6989	Espesor: 0,15

Respecto a la fuente, se ha simulado el material que la soporta; ya que la influencia fundamental esperada es la debida a la atenuación en el propio material. No se han simulado las componentes del posicionador.

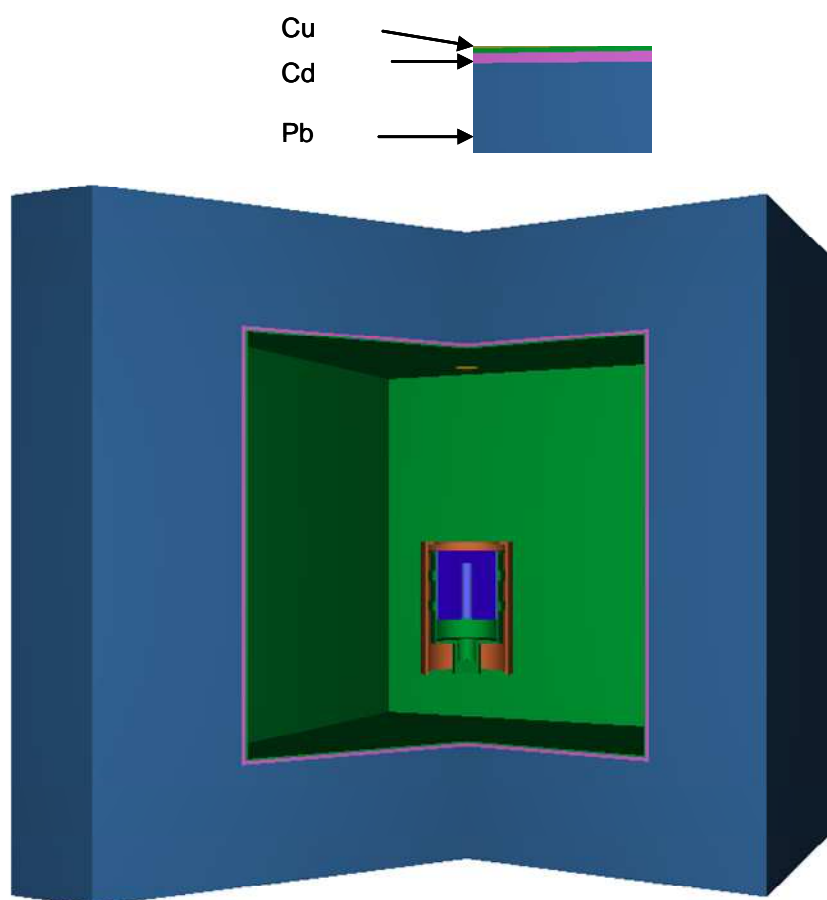
En la figura 2.8 y 2.9 se presentan distintas vistas del modelo utilizado en la simulación. La representación tridimensional se ha realizado con el programa GVIEW3D, que está incluido en el paquete de software de PENELOPE. En la figura 2.8 se puede ver un corte del detector y detalles de la estructura de la capa muerta superior (a) y del contacto N, junto con la capa de Indio y la carcasa de Cobre. En la figura 2.9 se puede ver un esquema general del detector y el blindaje cúbico, además de un detalle de la estructura del blindaje.



**Figura 2. 8. Representación del detector de rango extendido y detalles de la estructura de la capa muerta simulada.**

**A) Detalle de la capa muerta del cristal de Germanio.**

**B) Detalle de reflector, soporte de Cobre, cubierta de Aluminio y ventana.**



**Figura 2. 9. Vista general del modelo. Incluye detector y el blindaje.**

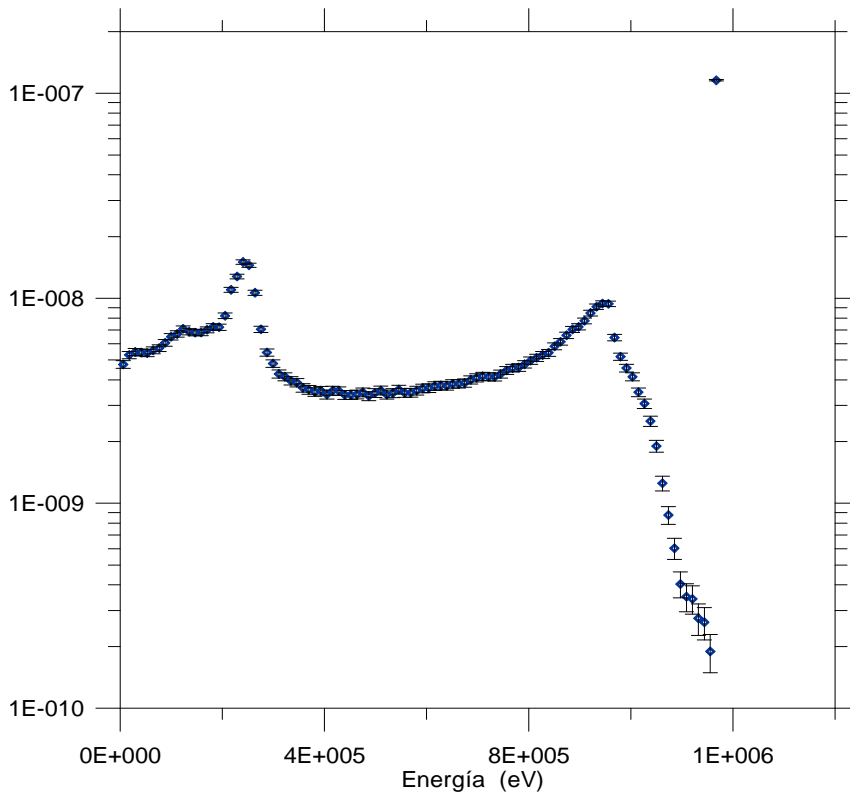
El cálculo se ha realizado en un ordenador de arquitectura cc-NUMA (Cache Coherent Non-Uniform Memory Access) masivamente paralelo, con una potencia pico de 192 GFlops. Dispone de 128 procesadores MIPS R14000 a 600 MHz, distribuidos en 32 nodos de 4 procesadores cada uno, con 1Gb de memoria por procesador y 1400 Gb de disco duro en armario RAID con 4 controladores fiber channel. Para cada energía se ha simulado el número de historias necesarias con el fin de que la incertidumbre estadística en la eficiencia sea menor de un 1%. Así, el número de historias simuladas varía desde  $10^7$  a  $10^8$  según la energía, y el tiempo necesario para cada simulación oscila entre 10000 segundos y 500000 segundos.

La salida del código PENELOPE proporciona un espectro de energía depositada en el detector o detectores definidos por el usuario, dividido en intervalos de energía

---



normalizada según el número de historias fotónicas simuladas. No se simula la parte de recolección de carga, es decir: se considera que la carga generada en el detector se recoge completamente. Tampoco se han considerado efectos instrumentales que puedan producir un ensanchamiento del espectro. En la figura 2.10 se muestra el espectro obtenido de la simulación de la línea de 1173 keV del  $^{60}\text{Co}$ .



**Figura 2. 10. Espectro de energía depositada en el detector de Germanio obtenido mediante la simulación con el código PENELOPE de una fuente de fotones gamma de energía 1173 keV.**

La eficiencia fotoeléctrica se calcula a partir de estos resultados como:

$$\varepsilon = \Delta E \cdot d_E$$

Donde:

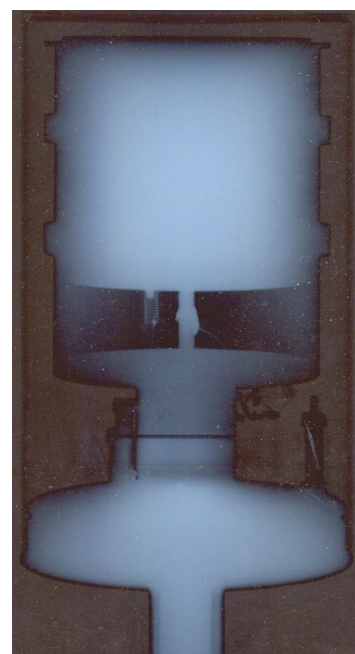
$\Delta E$ = Incremento de energía depositada (eV)

$d_E$ = Densidad de probabilidad de energía depositada en el detector(1/eV)

#### 2.2.4. Optimización

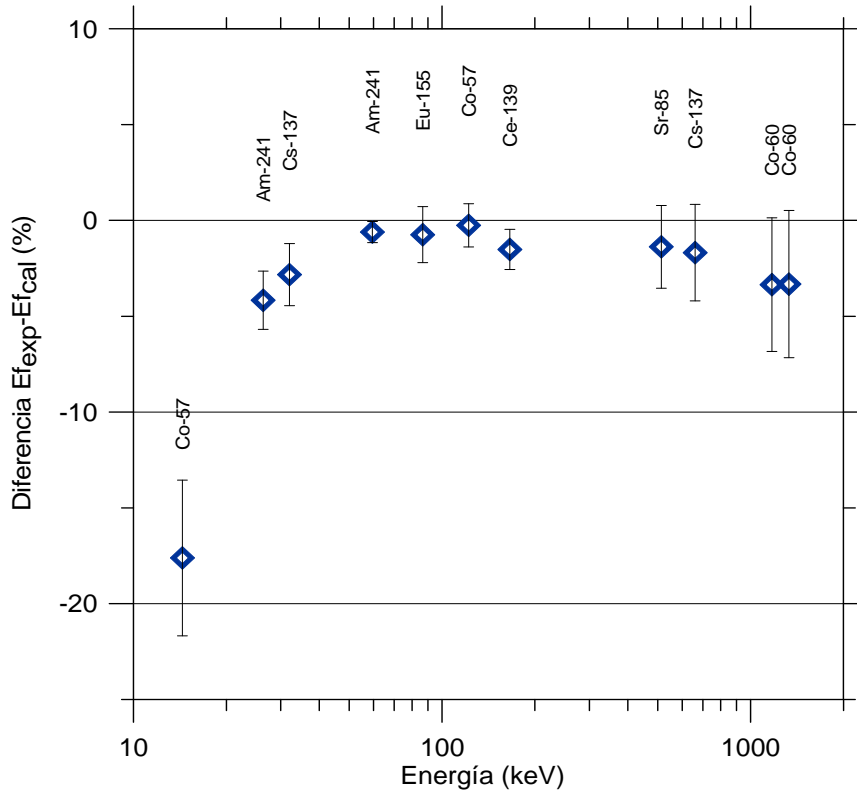
El primer modelo de detector utilizado para los cálculos con el código PENELOPE se ha construido a partir de las dimensiones nominales proporcionadas por el fabricante del detector, así como de la información obtenida a partir de radiografías realizadas, una de las cuales se presenta en la figura 2.11. Estas pusieron de manifiesto diferencias apreciables en la forma y dimensiones de algunos componentes por lo que, a partir de ellas, se realizaron algunos ajustes en los parámetros. Destacamos que el cristal se sitúa ligeramente desplazado hacia arriba respecto al soporte de cobre. También se ajustaron las dimensiones y estructura de anillos de este. En el presente modelo las dimensiones del cristal del detector se mantuvieron en sus valores nominales.

Con este modelo se procedió a la simulación de la energía correspondiente a siete de las fuentes disponibles. Para este cálculo se simularon  $10^6$  partículas primarias, lo que conduce a incertidumbres estadísticas de entre 0,5 y 4 % según la energía de los fotones simulados. En la figura 2.12 se ha representado la diferencia en tanto por ciento entre el valor de la eficiencia fotoeléctrica experimental y el valor de eficiencia calculado mediante este modelo inicial. Se observa que los valores experimentales de la eficiencia son, en general, más pequeños que los cálculos Monte Carlo. Estas diferencias se pueden atribuir a varios factores. Primero podría indicar que la distancia del detector a la ventana es algo mayor de la especificada por el fabricante. La mayor diferencia obtenida para las energías menores se puede atribuir a un mayor espesor de la ventana del detector, o bien de la capa muerta de Germanio en la parte superior del cristal. Las discrepancias a energías altas se deben



**Figura 2. 11. Radiografía del detector de germanio.**

posiblemente a que las dimensiones reales del cristal son algo menores. Todas estas hipótesis se explorarán a continuación.



**Figura 2. 12. Diferencias entre la medida experimental y el valor calculado mediante la simulación Monte Carlo con el modelo de detector construido a partir de los valores nominales proporcionados por el fabricante y los datos obtenidos de las radiografías realizadas.**

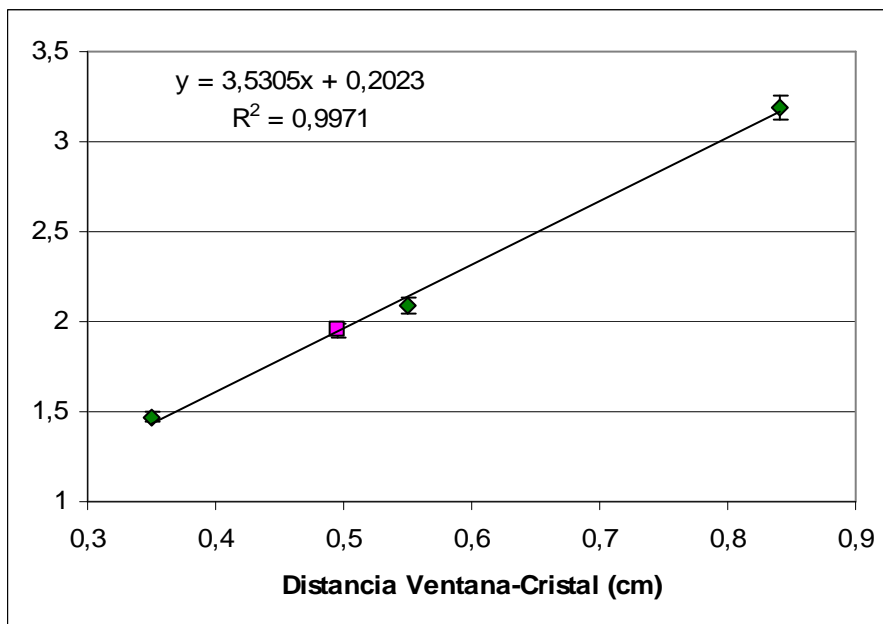
Para ajustar la distancia entre el cristal y la ventana del detector se han realizado dos medidas con una fuente de  $^{57}\text{Co}$  a dos distancias según el procedimiento propuesto por Helmer (2003). Si la distancia a la fuente es suficientemente grande en primera aproximación, las variaciones en la eficiencia de una fuente puntual se deberán a variaciones en el ángulo sólido:

$$\frac{\varepsilon_{10cm}}{\varepsilon_{15cm}} = \frac{\Omega_{10cm}}{\Omega_{15cm}}$$

Donde  $\varepsilon_{10\text{ cm}}$  y  $\varepsilon_{15\text{ cm}}$  son las eficiencias calculadas a 10 y 15 cm respectivamente, y  $\Omega_{10\text{ cm}}$  y  $\Omega_{15\text{ cm}}$  los ángulos sólidos correspondientes.

La fuente de  $^{57}\text{Co}$  emite un fotón de 122 keV, que para la eficiencia de recuento en las geometrías de medida no tiene sumas significativas con otros fotones, de forma que la relación entre eficiencias experimentales a 10 y 15 cm estará relacionada directamente con la distancia entre la fuente y el cristal. Se ha calculado el cociente de la eficiencia de detección a 10 y 15 cm mediante la simulación Monte Carlo para tres distancias entre la superficie de la ventana y el cristal: 0,35 cm; 0,55 cm, que corresponde a las especificaciones del fabricante, y 0,85 cm. En la figura 2.13 se presentan los resultados del cálculo. El procedimiento para deducir la distancia entre la superficie de la ventana y el cristal consiste en situar sobre la recta de ajuste el resultado experimental y, a partir de ésta establecer la distancia. Con este procedimiento se ha obtenido un valor de 0,495 cm. Según las especificaciones del fabricante, el espesor de la ventana de carbón epoxy es de 0,05 mm; por tanto la distancia entre la ventana y el cristal, según el ajuste, será de 0,445 cm frente a los 0,5 cm de valor nominal.

Para ajustar el resto de los parámetros del detector (radio y espesor del cristal, y radio y profundidad del pozo) se calculó la sensibilidad de la eficiencia a estos parámetros para unas pocas energías, como se describe a continuación.



**Figura 2. 13. Determinación de la distancia entre la fuente y el cristal de Ge mediante una fuente puntual de  $^{57}\text{Co}$ .**

En primer lugar se ajustó el espesor de la capa muerta de germanio en la superficie del detector. Para ello se utilizaron las emisiones de baja energía de la fuente de  $^{57}\text{Co}$  (14,41 keV) y los rayos  $X_k$  de la fuente de  $^{137}\text{Cs}$  (32,06 keV). Una vez ajustado el espesor, se comprobó el valor con las fuentes de  $^{241}\text{Am}$  (fotones de 26 y 60 keV) y con los rayos X emitidos por la fuente de  $^{139}\text{Ce}$ . El espesor de la capa muerta se ajustó desde un valor inicial de 300 nm a un valor final de 3  $\mu\text{m}$ . A pesar de la diferencia significativa entre el valor nominal y el calculado, este resultado está dentro de lo que podría esperarse dados los trabajos realizados anteriormente sobre crecimiento de la capa muerta del detector con el tiempo [72].

Para ajustar el Volumen activo de detección (diámetro del detector y profundidad), se realiza primero el ajuste del diámetro del detector con las fuentes de  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{85}\text{Sr}$  y  $^{51}\text{Cr}$ . Posteriormente se ajusta la profundidad del detector con la fuente de  $^{60}\text{Co}$ . El proceso se repite hasta que la diferencia entre las eficiencias experimentales y calculadas es menor del 1 %.

### 2.2.5. Resultados y conclusiones

Finalmente, se comparan todos los resultados obtenidos incluyendo las fuentes no utilizadas hasta el momento que tienen energías intermedias. En la figura 2.14 se ha representado la eficiencia fotoeléctrica experimental y calculada junto con el estadístico denominado *z-score*, definido como:

$$z = \frac{(\varepsilon_{\text{exp}} - \varepsilon_{\text{cal}})}{\left(u(\varepsilon_{\text{exp}})^2 + u(\varepsilon_{\text{cal}})^2\right)^{1/2}}$$

Los datos de la figura muestran una clara concordancia entre los valores experimentales y los calculado por la simulación. El hecho de que los residuos se distribuyan aleatoriamente alrededor de  $z = 0$  demuestra que el modelo numérico utilizado para representar el detector describe (dentro de las incertidumbres experimentales) la respuesta del detector. En la tabla 2.4 se presentan los resultados finales de las eficiencias. En la misma se puede ver que la diferencia calculadas en tanto por ciento entre la eficiencia experimental y la calculada es menor del 1 % en la mayor parte de los casos. El valor de  $\chi^2$  reducido fue de 0,75.

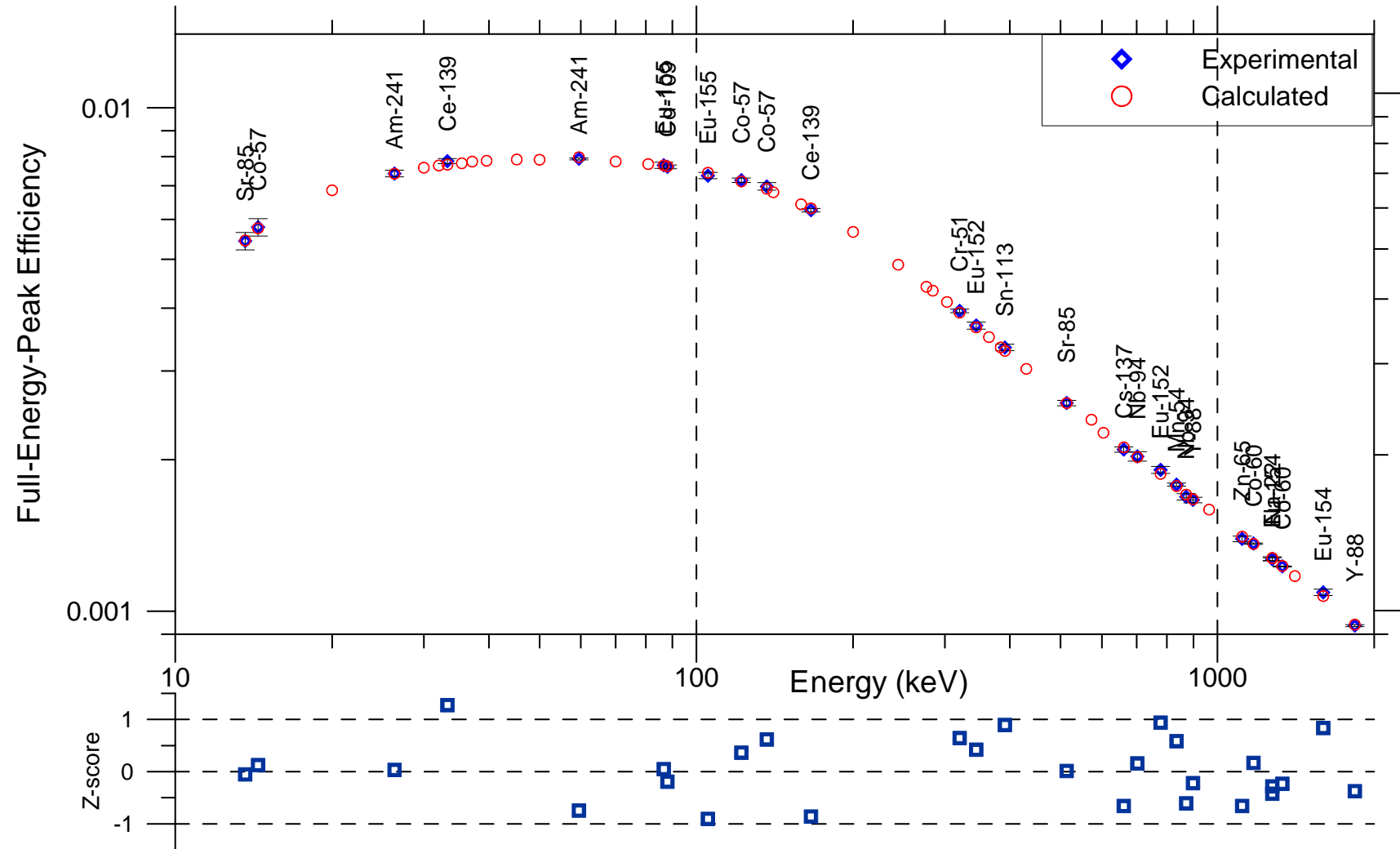


Figura 2. 14. Eficiencias fotoeléctricas experimentales y calculadas y diferencias expresadas en términos de su significación estadística ( z-scores).

Para poder comparar el espectro medido con el simulado, es necesario tener en cuenta que éste no describe la respuesta del sistema electrónico de medida que produce un ensanchamiento de las líneas debido al efecto del ruido electrónico y a los fenómenos estadísticos asociados al proceso de creación de carga. Ninguno de estos dos efectos se ha estudiado en la simulación, por lo que se representarán mediante la convolución del espectro simulado con la función respuesta del sistema de medida. Ésta puede calcularse componiendo cuadráticamente las funciones que representan ambos efectos. El efecto de la fluctuación estadística en la creación del número de portadores primarios ha sido tratado en profundidad por Fano [83] para el caso de los detectores de ionización gaseosa y fue posteriormente estudiado para otros tipos de detectores, entre ellos los de Germanio [3]. De acuerdo con la teoría, si el proceso de producción de pares electrón hueco fuera estadísticamente independiente, la varianza asociada a una línea gamma cuya energía fuera  $E$  vendría dada por:

$$\sigma^2 = (E / w)$$

donde  $w$  es la energía necesaria para la formación de un par electrón-hueco. El factor de Fano se define como la relación entre las varianzas experimental y teórica:

$$F = \frac{\sigma_{\text{exp}}^2}{\sigma^2}$$

Y su valor para el caso del Germanio es cercano a 0,15 [84]. Introduciendo este factor, y suponiendo que el pico de absorción total tiene una forma gaussiana, la contribución de este efecto a la anchura a mitad de altura (FWHM) podrá expresarse como:

$$(FWHM)_f = 2,36 \sigma_{\text{exp}} = 2,36 (EF / \epsilon)^{1/2}$$

Esta contribución deberá componerse cuadráticamente con la debida a la cadena electrónica:

$$(FWHM)^2 = (FWHM)_e^2 + (FWHM)_f^2$$

En la figura 2.15 se representa el cuadrado de la anchura de pico a mitad de su altura,  $(FWHM)^2$ , frente a la energía. A partir de los datos representados, se ha realizado el ajuste por mínimos cuadrados a una recta y se ha obtenido la siguiente expresión:

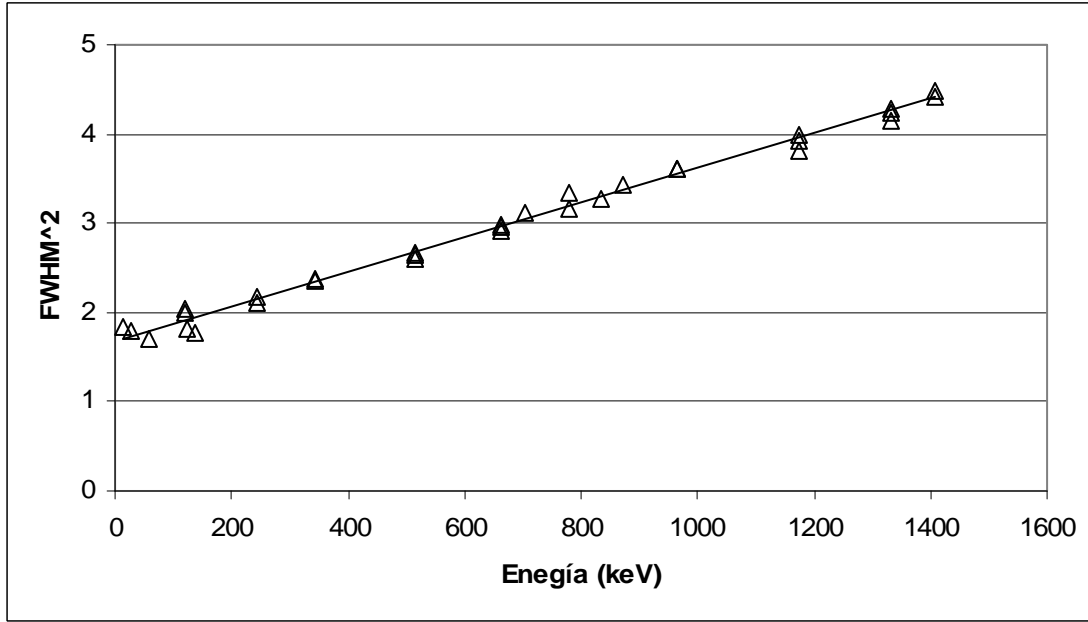
---



$$(FWHM)^2 = 0,0019E + 1,6843$$

$$r^2 = 0,993$$

donde  $r^2$  es el coeficiente de correlación para el ajuste.



**Figura 2. 15. Valor experimental de la anchura de pico a mitad de altura al cuadrado  $(FWHM)^2$  del detector de Germanio de rango extendido frente a la energía del fotón.**

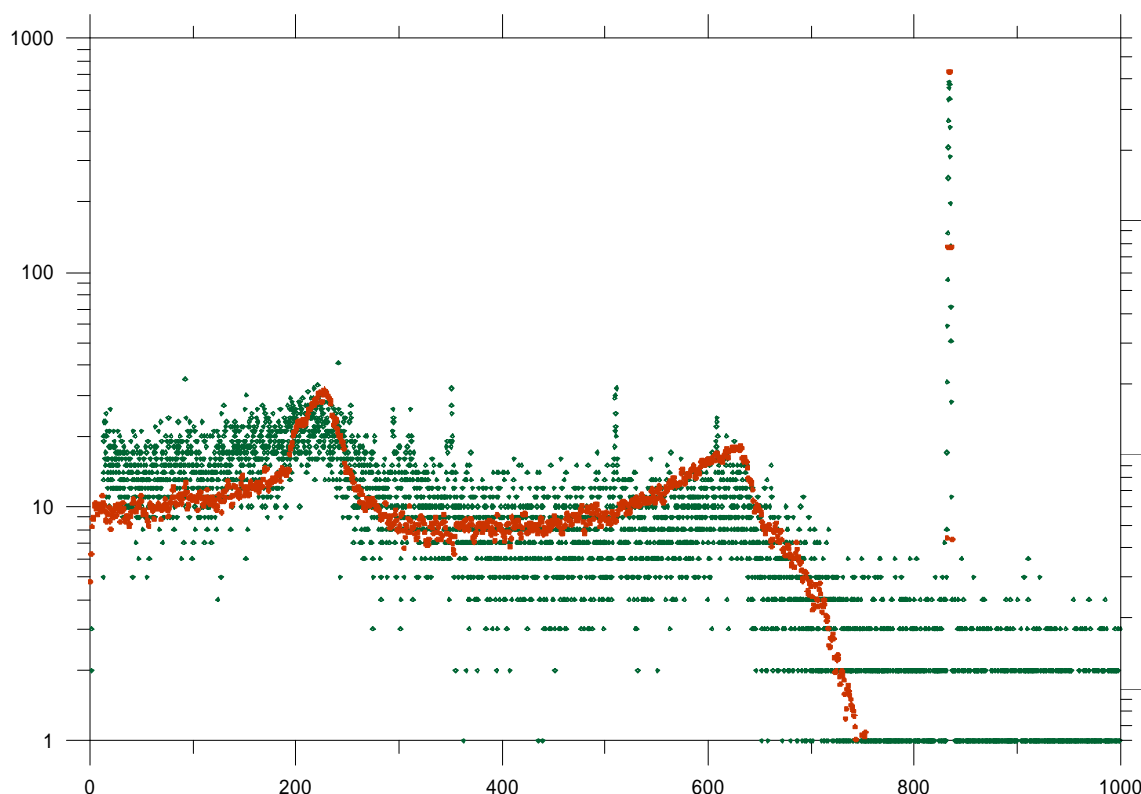
A partir de los coeficientes del ajuste y suponiendo un valor de 2,9 eV para  $\epsilon$ , se obtiene un valor para el factor de Fano de 0,118 que está dentro del rango de valores obtenidos por otros estudios para detectores de Germanio [84]. Este resultado confirma la validez de la expresión anterior.

Tomando como base el ajuste, se ha realizado la convolución del espectro calculado con una gaussiana con desviación estándar igual a:

$$\sigma = \frac{FWHM_{ajustada}}{2,36}$$

El espectro así obtenido es ya directamente comparable al medido con el detector. En la figura 2.16. se comparan el espectro convolucionado de la simulación de fotones gamma de 834,8 keV y el espectro experimental de una fuente de  $^{54}\text{Mn}$ . En

general se observa una buena concordancia entre el espectro medido y el calculado con la simulación. En el espectro experimental se puede ver la línea de 834,8 keV del  $^{54}\text{Mn}$ , así como algunas adicionales que corresponden al fondo radiactivo existente en el laboratorio. Algunos ejemplos son: la línea de 351,9 keV que corresponde al nucleido  $^{214}\text{Bi}$ , el cual pertenece a la serie del  $^{238}\text{U}$ ; el pico de aniquilación de 511 keV; y el pico de 609,3 keV, que corresponde al nucleido  $^{214}\text{Po}$  perteneciente a la serie radiactiva del  $^{238}\text{U}$ .



**Figura 2. 16. Comparación entre los espectros experimental de  $^{54}\text{Mn}$  (rombos) y simulado para un fotón gamma de 834,8 keV (círculos).**

Se ha calibrado en eficiencias un detector de Germanio mediante una combinación de medidas y cálculos en un rango de energías amplio (14-1800 keV) con incertidumbres inferiores al 1 %. Con este procedimiento se puede predecir el valor de la eficiencia para energías en las que es difícil o imposible obtener medidas directas. Esta aproximación se basa en el uso de las secciones eficaces de interacción; ello

minimiza algunos problemas que pueden aparecer cuando se utilizan ajustes funcionales o interpolaciones numéricas a partir de datos experimentales.

### 2.3. MODELIZACIÓN DE UNA FUENTE EMISORA DE POSITRONES: DETERMINACIÓN DE LA EFICIENCIA Y APLICACIÓN A LA MEDIDA DE $^{22}\text{Na}$ Y $^{18}\text{F}$

#### 2.3.1. Planteamiento

Una vez caracterizado el detector y conocida la curva de calibración en eficiencias, la determinación de la actividad de una fuente mediante espectrometría gamma es un proceso relativamente sencillo y fiable. Estudiaremos a continuación la extensión del método a la medida de radionucleidos emisores de positrones, cuyo decaimiento va acompañado de la emisión de radiación de aniquilación de 511 keV. Los procedimientos desarrollados en el apartado anterior no son directamente aplicables, ya que la emisión de la radiación procede de los puntos donde se produce la aniquilación. Estas emisiones, para el tipo de fuentes que se han descrito, se producen fuera de la fuente. A causa de ello, la geometría fuente-detector es diferente a aquella para la cual se calibró el detector.

Por otra parte, el pico que se produce por la detección del fotón de 511 keV de aniquilación es sensiblemente más ancho que el producido por fotones gamma de la misma energía. Este incremento es el resultado del ensanchamiento por efecto Doppler del fotón de aniquilación causado por el movimiento del sistema electrón-positrón. Hotz et al. [85] han explicado este ensanchamiento aplicando el principio de conservación del momento y la energía. Consideremos un par electrón-positrón que se mueven con respecto del detector con momento total  $p$  en el momento de la aniquilación, según el principio de conservación de la energía, y asumamos que el detector recibe un fotón de energía  $h\nu$ :

$$2mc^2 = h\nu + h\nu'$$

$$p = \frac{h\nu}{c} + \frac{h\nu'}{c}$$

El momento del par electrón-positrón puede expresarse en términos de la diferencia entre la energía observada ( $h\nu$ ) y la que se observaría si el momento fuera igual a cero ( $h\nu_0=mc^2$ ):

$$p = \frac{2(h\nu - h\nu_0)}{c}$$

Generalmente los positrones son frenados en el medio antes de la aniquilación [85], de manera que el momento del par electrón-positrón es el de los electrones del medio. En términos de la energía:

$$E = \frac{p^2}{2m} = \frac{2(h\nu - h\nu_0)^2}{mc^2}$$

El ensanchamiento del pico obligará a cambiar el procedimiento para la determinación del área que se ha utilizado previamente, y que había sido optimizado para la medida de fuentes gamma.

El procedimiento seguido consiste en la determinación de las condiciones óptimas experimentales, de manera que la medida de una fuente emisora de positrones pueda llevarse a cabo en las condiciones más parecidas a las de las fuentes gamma convencionales. Para ello, se han ensayado diversas configuraciones en las que la fuente original se rodea de un absorbente; de este modo, la aniquilación de los positrones tendría lugar cerca del punto donde fueron emitidos y la eficiencia de detección sería cercana a la que correspondería a un fotón gamma de energía similar. El método se ha aplicado al estudio de dos emisores de positrones muy importantes en el campo de la Medicina Nuclear:  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$ .

### 2.3.2. Dispositivo experimental

Se ha utilizado el dispositivo experimental descrito en el apartado anterior para la calibración en eficiencias del detector. Las fuentes utilizadas se han preparado en el CIEMAT, con el procedimiento ya descrito, a partir de disoluciones calibradas por otros métodos en sus laboratorios.

### 2.3.3. Eficiencia de detección experimental

Como se ha explicado en apartados anteriores, la eficiencia del pico fotoeléctrico se calcula a partir de la siguiente expresión:

$$\epsilon(E) = \frac{N}{AP_{\gamma}t} f_c$$

donde:

$A$  es la actividad de la fuente de referencia a la fecha de la medida.

$N$  es el número de cuentas neto en el fotopico considerado.

$P_\gamma$  es la probabilidad de emisión del fotón gamma.

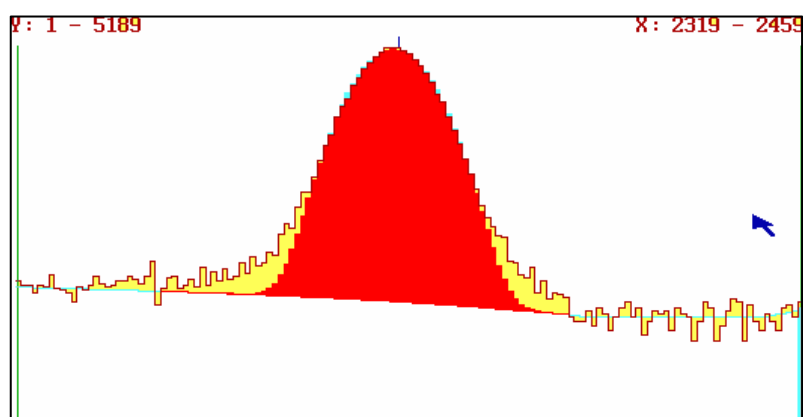
$t$  es el tiempo de medida de la muestra.

$f_c$  es el factor de corrección por suma en coincidencia.

### 2.3.3.1 Eficiencia experimental del fotón de aniquilación del $^{22}\text{Na}$ .

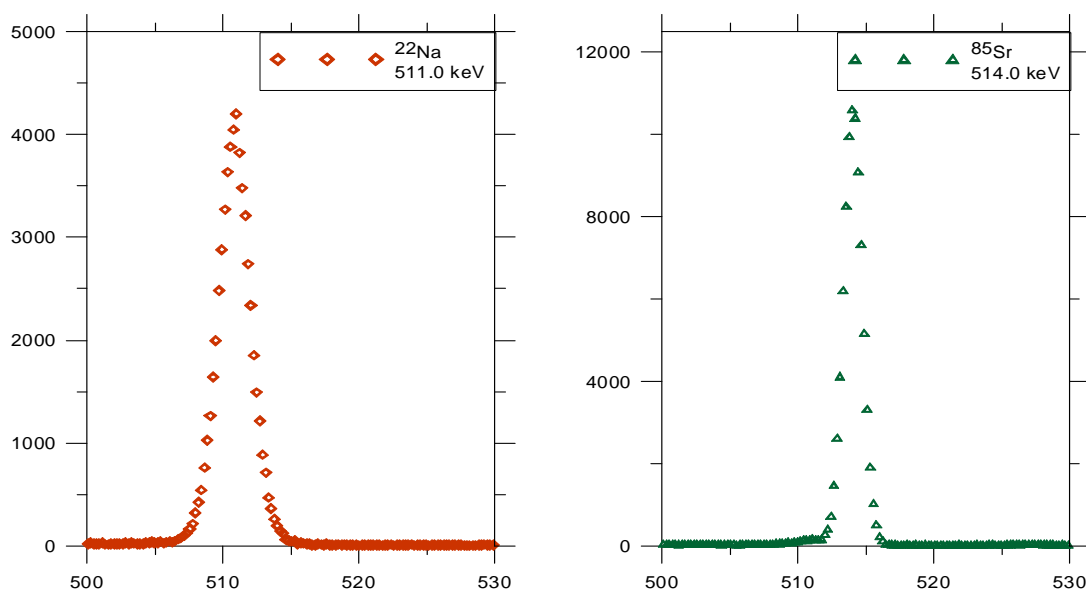
#### Estimación del Área

Para la estimación del área del fotopico se ha utilizado en primer lugar el código GRILS [81]. En la figura 2.17 se muestra el resultado del ajuste realizado al fotopico del fotón de 511 keV de aniquilación de la  $\beta^+$  emitida por una fuente de  $^{22}\text{Na}$  medida en la configuración experimental utilizada para la calibración del detector. Como se puede ver en la figura el ajuste no ha resultado satisfactorio, ya que existe una gran discrepancia entre el área ajustada y el área medida. La diferencia se debe al ensanchamiento que se produce en el fotopico por el efecto Doppler que sufren los fotones de aniquilación cuando se aniquilan con los electrones en movimiento.



**Figura 2. 17. Ajuste del pico fotoeléctrico del fotón de 511 keV de aniquilación de la radiación  $\beta^+$  emitida por una fuente de  $^{22}\text{Na}$ . Ajuste realizado con el software GRILS del paquete de programa GANAAS.**

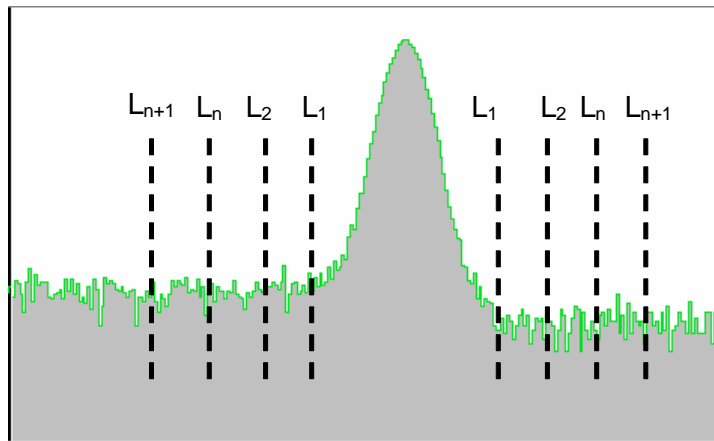
Una comparación entre el espectro de la radiación de aniquilación para una fuente de  $^{22}\text{Na}$  y la línea de 514 keV de  $^{85}\text{Sr}$  se presenta en la figura 2.18. El fotopico de los fotones de aniquilación es sensiblemente más ancho que el correspondiente a la fuente de  $^{85}\text{Sr}$ . Así, la resolución (FWHM) medida para el fotopico de 511 keV de aniquilación es de 2,67 keV frente a un valor de 1,63 keV para el  $^{85}\text{Sr}$ .



**Figura 2. 18. Espectro de fotones de aniquilación de una fuente de  $^{22}\text{Na}$  (Izquierda) y de fotones gamma de 514 keV emitido por una fuente de  $^{85}\text{Sr}$ . La escala de energías es idéntica para ambos espectros.**

---

Como el ajuste para la estimación del área neta utilizado anteriormente no ha sido satisfactorio, la evaluación del área del fotopico se ha realizado con un procedimiento alternativo. El método consiste en calcular el área neta del pico a partir de la integral del espectro, ajustando la función del fondo entre unos límites determinados. Para determinar los límites de integración se utiliza un proceso iterativo: se comienza definiendo unos límites lo suficientemente amplios para que incluyan el fotopico. Según estimaciones previas del incremento de energía por desplazamiento Doppler [85, 86] estos serán de al menos  $\pm 30$  keV. A partir de estos límites se estima el valor del área neta del fotopico y se definen unos límites k-canales mayores. Se repite el proceso hasta que el área del fotopico no se mantiene constante o disminuye. La base del método es considerar que el fondo estará bien estimado siempre que el área neta del fotopico no varíe con los límites de integración. La figura 2.19 ilustra el proceso de selección de los límites de integración. El software utilizado para la medida, tanto del área integral como del fondo, es EMCA-2000 de SILENA [87].



**Figura 2. 19. Proceso de selección de los límites de integración para el cálculo del área del fotopico de aniquilación. Los límites  $L_1, L_2 \dots L_n$  van incrementándose si el área aumenta, hasta que en  $L_{n+1}$  el área calculada es menor que en  $L_n$ .**

El área se calcula a partir de la suma del número de cuentas medidas sobre el fondo en una región definida por dos canales  $L_i$ . El fondo se calcula por el método de

mínimos cuadrados, mediante la interpolación de una recta entre K puntos tomados externamente a los canales de los bordes del fotopico  $L_i$ :

$$y = a + bx$$

donde  $x$  es el número de canal e  $y$  es el valor del fondo. De manera que:

$$Area = (Integral - fondo)$$

Y el fondo es calculado con los coeficientes (a, b) obtenidos de la interpolación lineal:

$$Fondo = \sum (a + bx)$$

$x$  varía dentro de los límites  $L_i$

La incertidumbre en la estimación del área por este procedimiento tiene dos contribuciones:

$$u(\acute{area}) = \sqrt{u^2(\acute{area}_{Integral}) + u^2(Fondo)}$$

- Incertidumbre en el área integral. Es una incertidumbre de tipo A, según la clasificación definida en la *Guía para la expresión de la incertidumbre de medida*, basada en las recomendaciones 1 del Comité Internacional de Pesas y Medidas (CIPM) y en la recomendación INC-1 (1980) del grupo de trabajo sobre la expresión de incertidumbres [88]. Se calcula a partir de la raíz cuadrada del área total.
- Incertidumbre en el área del fondo. Se compone de dos contribuciones. La incertidumbre estadística en la determinación del número de cuentas del fondo, que es de tipo A y corresponde a la raíz cuadrada del número de cuentas en el fondo. La otra contribución es de tipo B y se refiere al modelo utilizado para estimar el fondo, a partir de los límites superior e inferior determinados. Para ello, se ha supuesto una distribución de probabilidad rectangular simétrica cuyos límites inferior y superior corresponden a los valores  $Fondo_{Min}$  y  $Fondo_{Max}$  respectivamente. Según esto [88], la densidad de probabilidad del fondo es:

$$p(Fondo) = (1/2a) \quad \text{para} \quad Fondo_{Min} \leq Fondo \leq Fondo_{Max}$$

$$p(Fondo) = 0 \quad \text{para} \quad Fondo_{Min} \geq Fondo \text{ o } Fondo \geq Fondo_{Max}$$


---



con:

$$a = \frac{Fondo_{Max} - Fondo_{Min}}{2}$$

La mejor estimación del fondo es la media entre el fondo máximo medido y el mínimo,

$$\mu_{Fondo} = \frac{Fondo_{Max} + Fondo_{Min}}{2}$$

y la incertidumbre típica de esta estimación es:

$$u(\mu_{Fondo}) = \frac{a}{\sqrt{3}}$$

La incertidumbre combinada de las dos contribuciones es:

$$u(\acute{area}_{Neta}) = \sqrt{(\acute{area}_{Integral}) + (\acute{area}_{Fondo}) + u^2(\mu_{Fondo})}$$

#### Otros parámetros

El nucleido  $^{22}\text{Na}$  se desintegra esencialmente para poblar el nivel de energía de 1275 keV de  $^{22}\text{Ne}$  (89,84 % por emisión  $\beta^+$  y 10,11 % por captura electrónica) con un periodo de semidesintegración de 2,6027 (10) años. La transición gamma del nivel excitado al fundamental está muy débilmente convertida, por lo que la desexcitación se produce casi exclusivamente por emisión de un fotón gamma. Una fracción pequeña (0,056 %) se desintegra al nivel fundamental. Los rayos x producidos están por debajo del nivel de energía que puede detectarse con el sistema de medida utilizado. La desintegración  $\beta^+$  conduce a la emisión de dos fotones de aniquilación de 511 keV con una probabilidad de emisión muy alta, y que se conoce con buena precisión ( $P_\gamma = 177,99$  (27) %) [55].

La fuente utilizada para las medidas se ha preparado y calibrado en el CIEMAT a partir de una disolución calibrada mediante el método de coincidencias  $4\pi\beta-\gamma$  y  $4\pi\gamma$ , y trazada directamente al BIPM. La actividad de la fuente a la fecha de la medida fue de  $1136 \pm 6 \text{ Bq}$ .

Los resultados de la eficiencia experimental así calculada se presentan en la tabla 2.6.

**Tabla 2. 6. Eficiencia experimental del pico de absorción total del fotón gamma de 514 keV emitido por el  $^{85}\text{Sr}$  y del fotón de aniquilación de la emisión  $\beta^+$  del  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$ .**

	Eficiencia	u ( $\epsilon$ )
Fotón 514 keV $^{85}\text{Sr}$	$2,59 \times 10^{-3}$	$3,1 \times 10^{-5}$
Fotón aniquilación $^{22}\text{Na}$	$3,50 \times 10^{-3}$	$5,0 \times 10^{-5}$
Fotón de aniquilación $^{18}\text{F}$	$3,36 \times 10^{-3}$	$4,6 \times 10^{-5}$

### 2.3.3.2 Eficiencia experimental del fotón de aniquilación del $^{18}\text{F}$

#### Estimación del Área

Para estimar el área del fotopico de aniquilación de la fuente de  $^{18}\text{F}$  se ha seguido el procedimiento explicado anteriormente.

#### Otros parámetros

El nucleido  $^{18}\text{F}$  se desintegra dando lugar a  $^{18}\text{O}$  por emisión  $\beta^+$  (96,86 %) y por captura electrónica (3,14 %) con un periodo de semidesintegración de 1,8288 (3) horas [1]. La desintegración  $\beta^+$  conduce a la emisión de dos fotones de aniquilación de 511 keV con una probabilidad de emisión muy alta, y que se conoce con buena precisión ( $P_\gamma = 193,72$  (27) %) [1].

La fuente utilizada se ha preparado y calibrado en el CIEMAT con la técnica  $4\pi\gamma$ . La actividad de la fuente era de  $6968 \pm 20$  Bq a la fecha de la medida.

Los resultados de la eficiencia experimental así calculada se presentan en la tabla 2.6. En la tabla también presentamos la eficiencia fotoeléctrica de un fotón gamma de 514 keV, emitido por una fuente de  $^{85}\text{Sr}$ . Se observan diferencias muy grandes entre la eficiencia de detección de los fotones de aniquilación y la de un fotón gamma de energía próxima. Como ya se comentó anteriormente, la explicación de estas diferencias se puede atribuir a que la emisión de la radiación procede de los puntos donde se produce la aniquilación, lo que, para el tipo de fuentes que se han descrito, se produce mayoritariamente fuera de la fuente. Para probar la validez de esta hipótesis se han

ensayado otras geometrías para las cuales la aniquilación de los positrones ocurre en las cercanías del punto donde se produce la emisión.

### 2.3.3.3 Medidas con diversas configuraciones geométricas

Las configuraciones ensayadas, que se recogen en la tabla 2.7, son cuatro:

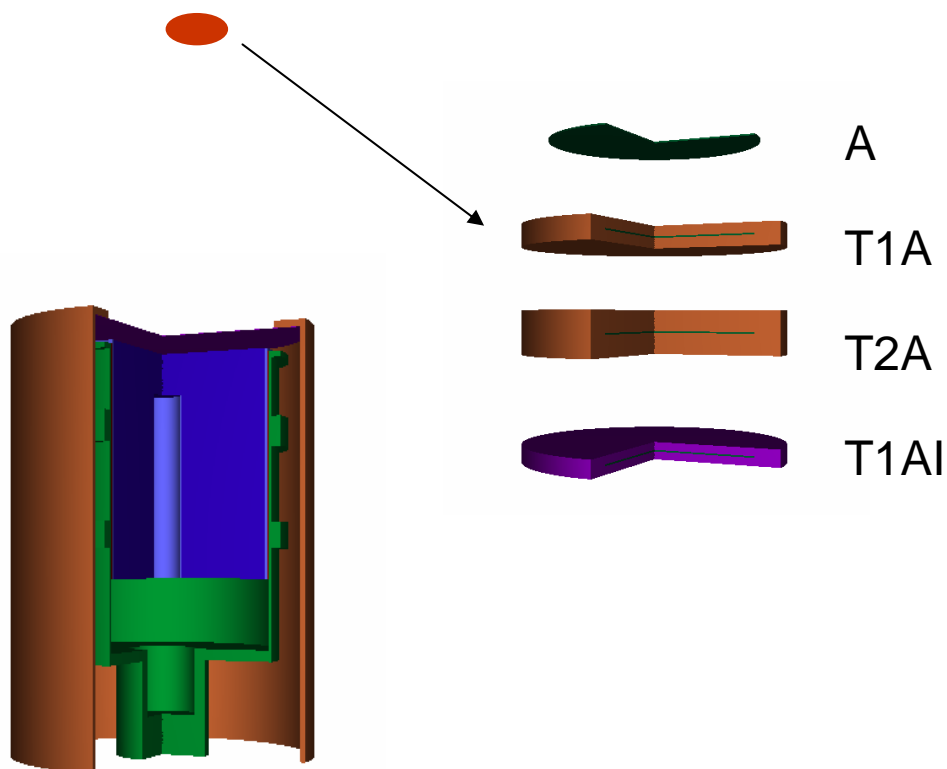
- Configuración A, que corresponde a una fuente de polietileno en las mismas condiciones experimentales con las que se calibró el detector.
- Configuraciones T1A y T2A, en las que se ha utilizado aluminio como material absorbente. La configuración T1A corresponde a la fuente de polietileno situada entre dos discos de aluminio de aproximadamente 1 mm de espesor cada uno. La configuración T2A corresponde a un espesor de los discos de aluminio de 2 mm.
- Finalmente, la configuración T1AI, que corresponde a dos discos de acero inoxidable de 0,75 mm.

Los soportes de las fuentes se adaptaron con el objetivo de mantener constante la distancia entre la fuente y el detector. La tabla 2.7 recoge las características geométricas de los discos absorbentes utilizados.

**Tabla 2. 7. Geometrías estudiadas para la medida de la eficiencia de detección del fotón de aniquilación de 511 keV en un detector de Germanio de rango extendido. A: fuente de polietileno a 15 cm del detector. T1A: fuente a la misma distancia dentro de un disco de aluminio de 2 mm de espesor total. T2A: fuente a la misma distancia dentro de un disco de aluminio de 4 mm de espesor total. T1AI: fuente a la misma distancia dentro de un disco acero inoxidable y 1,5 mm de espesor total.**

Nombre	Material	Espesor	Distancia Fuente-Detector
A	Polietileno	150 $\mu$ m	15,86 cm
T1A	Aluminio	1,03 mm	15,86 cm
T2A	Aluminio	2,00 mm	15,86 cm
T1AI	Acero Inoxidable	0,75 mm	15,84 cm

En la figura 2.20 se representan las distintas configuraciones estudiadas.



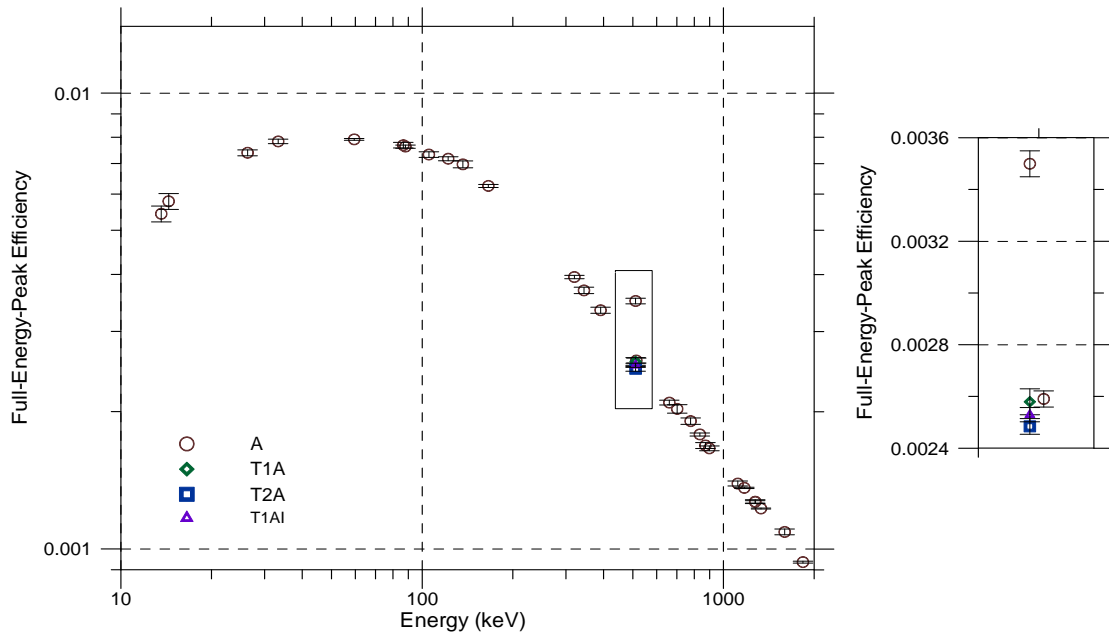
**Figura 2. 20.** Configuraciones experimentales utilizadas para la medida de la eficiencia de detección del fotón de aniquilación según, la nomenclatura explicada en la tabla 2.7.

El resultado de la eficiencia experimental para las diferentes geometrías consideradas se presenta en la tabla 2.8.

**Tabla 2. 8.** Eficiencias de detección experimental del fotón gamma de aniquilación de en las distintas configuraciones ensayadas.

Geometría	$^{22}\text{Na}$		$^{18}\text{F}$	
	Eficiencia	u (ε)	Eficiencia	u (ε)
A	$3,47 \times 10^{-3}$	$5,00 \times 10^{-5}$	$3,36 \times 10^{-3}$	$4,65 \times 10^{-5}$
T1A	$2,58 \times 10^{-3}$	$5,02 \times 10^{-5}$	$2,52 \times 10^{-3}$	$3,01 \times 10^{-5}$
T2A	$2,49 \times 10^{-3}$	$3,02 \times 10^{-5}$	$2,43 \times 10^{-3}$	$3,03 \times 10^{-5}$
T1AI	$2,53 \times 10^{-3}$	$2,75 \times 10^{-5}$	$2,40 \times 10^{-3}$	$2,85 \times 10^{-5}$

En la figura 2.21 se ha representado la curva de eficiencia a 15 cm del detector; incluye las eficiencias experimentales obtenidas para el fotón de aniquilación del positrón emitido por una fuente de  $^{22}\text{Na}$ . La eficiencia de detección de los fotones gamma de aniquilación de 511 keV en la configuración original está, tal y como se esperaba, muy alejada de la curva de calibración. La zona próxima a 511 keV se ha ampliado y se puede ver que una vez que se introduce la fuente en los discos, la eficiencia obtenida se aproxima a la equivalente a un fotón gamma de la misma energía.



**Figura 2. 21.** Curva de calibración a 15 cm en el rango de energías de 10 a 2000 keV. Se ha ampliado la zona entre 500 y 520 para que pueda apreciarse en detalle la variación del fotón de aniquilación en las distintas geometrías ensayadas.

Existen diferencias sustanciales entre los valores de eficiencia obtenidos en las diferentes geometrías:

- La mayor diferencia, en torno a un 35 %, se observa entre la eficiencia experimental obtenida en la geometría *A* (fuente sobre soporte de polietileno sin ningún absorbente interpuesto) y la eficiencia de un fotón gamma de energía próxima al fotón de aniquilación (514 keV). Esta diferencia se puede atribuir a

que en la geometría *A* no se ha confinado la aniquilación del positrón en las cercanías de la fuente. Por tanto, la emisión de aniquilación puede provenir de puntos más cercanos o con mayor eficiencia de detección, dada la asimetría de la configuración *A*. En esta configuración la distancia entre la fuente y la parte superior del blindaje es de apenas 5 mm, lo que hace que los positrones tengan mayor recorrido hacia el detector que en el sentido contrario.

- La diferencia entre la eficiencia de detección de un fotón gamma de energía próxima a la energía de aniquilación (fotón de 514 keV emitido por el  $^{85}\text{Sr}$ ) y la eficiencia del fotón de aniquilación medido en las geometrías *T1A*, *T2A* y *T1AI* es pequeña: menor en todos los casos del 5, 2 % y menor del 1,8 % respecto a la geometría *T1A*.
- Las diferencias de eficiencias entre las geometrías *T1A*, *T2A* y *T1AI* también son pequeñas, de un máximo de un 3,5 %.
- Se observa también diferencias (entre un 2,3 y un 5 %) entre la eficiencia del fotón de aniquilación del positrón emitido por una fuente de  $^{22}\text{Na}$  y de  $^{18}\text{F}$  para la misma geometría.

Se ha estudiado si las diferencias en las eficiencias obtenidas en las geometrías *T1A*, *T2A* y *T1AI* y que no se cubren con la incertidumbre experimental se pueden atribuir a la diferente atenuación de la radiación que se tendría entre los diferentes discos utilizados en las configuraciones *T1A*, *T2A* y *T1AI*. Para esto, se han calculado los coeficientes de atenuación total de los dos materiales empleados mediante el programa de cálculo XCOM [5]. Se ha supuesto que se tiene una fuente colimada dirigida hacia el disco. La atenuación en el disco será:

$$f_{\text{atenuación}} = e^{-(\mu \cdot \rho \cdot d)}$$

donde  $\mu$  es el coeficiente de atenuación total,  $\rho$  es la densidad del material y  $d$  es el espesor del disco.

En la tabla 2.9 se presentan los resultados de este cálculo para un fotón de 511 keV.

**Tabla 2. 9. Factor de atenuación estimado para las distintas configuraciones de medida.**

	Energía keV	Densidad (g/cm <sup>3</sup> )	$\mu$ (cm <sup>2</sup> /g)	d cm	$f_{\text{atenuación}}$
T1A	511	2,7	$8,37 \times 10^{-2}$	0,1	0,978
T2A	511	2,7	$8,37 \times 10^{-2}$	0,2	0,956
T1AI	511	7,86	$8,33 \times 10^{-2}$	0,075	0,952

Con este factor se ha corregido la eficiencia experimental y se han comparado las eficiencias obtenidas para los dos radionucleidos medidos y para las distintas geometrías. Los resultados se muestran en la tabla 2.10. Las diferencias observadas en términos de z-score no se pueden justificar únicamente por el efecto de la atenuación en los discos.

**Tabla 2. 10. Diferencias entre las eficiencias de detección corregida por atenuación del fotón gamma de aniquilación medidas en las distintas configuraciones experimentales, y diferencias respecto a la eficiencia de un fotón gamma de 514 keV.**

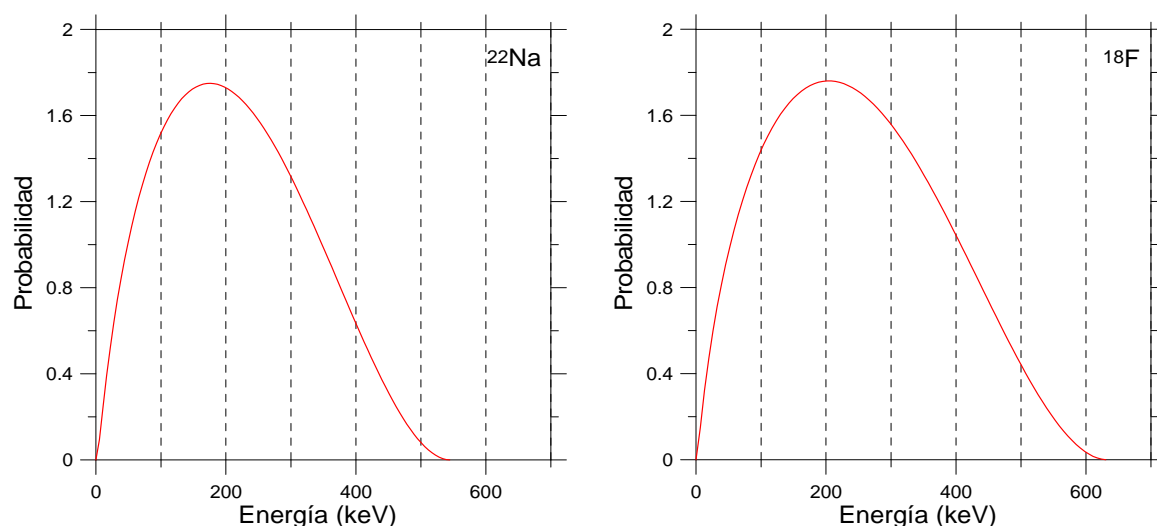
	Eficiencia corregida por atenuación $\times 10^{-3}$			Diferencia con la eficiencia de un fotón gamma de 514 keV			
				<sup>22</sup> Na		<sup>18</sup> F	
	<sup>22</sup> Na	<sup>18</sup> F	z-score	%	z-score	%	z-score
T1A	2,64 (5)	2,58 (3)	1,03	-0,9	0,39	0,4	0,26
T2A	2,60 (3)	2,54 (3)	1,41	0,3	0,20	2,1	1,21
T1AI	2,66 (3)	2,52 (3)	3,30	-1,8	-1,07	2,6	1,55

### 2.3.4. Simulación Monte Carlo

El modelo de detector optimizado y validado anteriormente se ha utilizado para evaluar el comportamiento del fenómeno de aniquilación en las geometrías definidas en la tabla 2.7 mediante una serie de simulaciones Monte Carlo realizadas con el código PENELOPE. Se ha modificado el código PENELOPE para que proporcione la posición y energía de los positrones en el momento de la aniquilación y, por tanto, cuando se emitan los fotones de 511 keV. En cada simulación, y si se sigue el procedimiento ya mencionado, se obtendrán una serie de eficiencias en las distintas geometrías que se compararán con las experimentales calculadas anteriormente.

Para estudiar las posiciones en las que se produce la aniquilación se han generado 20000 historias de cada radionucleido. Por otro lado, en el cálculo de la eficiencia, se han generado  $2 \times 10^6$  positrones.

Entre los datos necesarios para la simulación del problema se encuentran los espectros de emisión  $\beta^+$  de una fuente puntual de  $^{22}\text{Na}$  y de  $^{18}\text{F}$ . Para obtenerlos, se generó la distribución numérica de los respectivos espectros de Fermi mediante el programa EFFY [60, 61]. La figura 2.22 presenta dichos espectros.

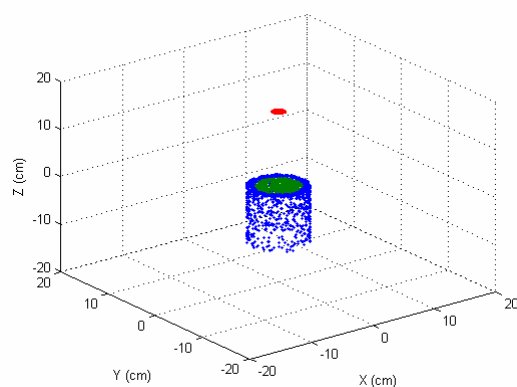
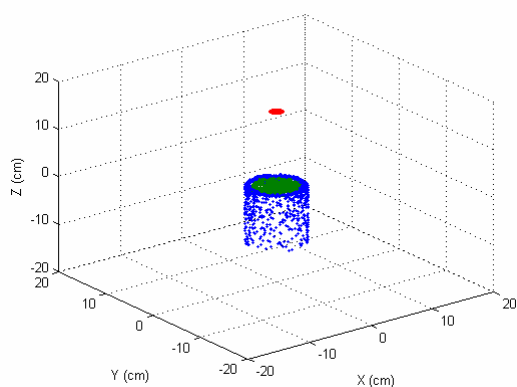


**Figura 2. 22. Distribuciones de Fermi para el espectro de energía de las partículas  $\beta^+$  emitidas en la desintegración de los radionucleido  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$ , utilizadas como dato de entrada en las simulaciones.**

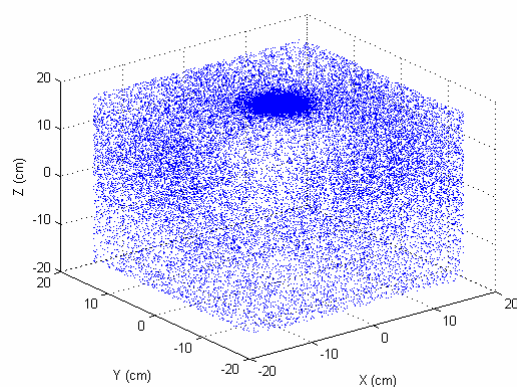
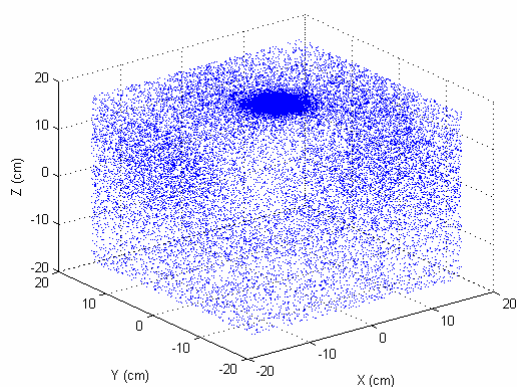
En primer lugar se han simulado las fuentes de  $^{22}\text{Na}$  y de  $^{18}\text{F}$  en la geometría A (fuente de Polietileno sin absorbentes adicionales). Las figuras 2.23 y 2.24 muestran las distintas partes del dispositivo experimental donde se producen las aniquilaciones para los dos radionucleidos estudiados. Para una mejor visualización de los resultados se han agrupado en figuras distintas las posiciones en las que se produce la aniquilación según el material del sistema fuente/detector/materiales interpuestos. La fracción de positrones aniquilados en los distintos componentes del sistema detector/fuente/blindaje se presenta en la tabla 2.11. Como se ve, la mayor parte de la aniquilación se produce en el blindaje de cobre y, en una proporción menor, en la fuente y en el aire.



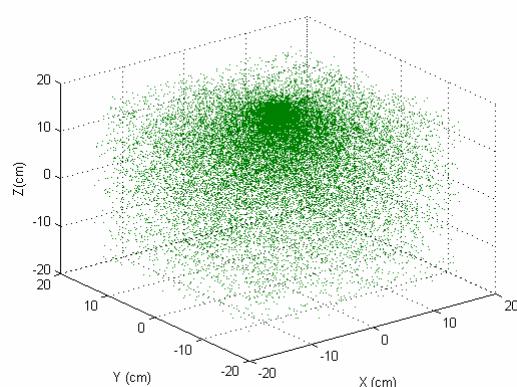
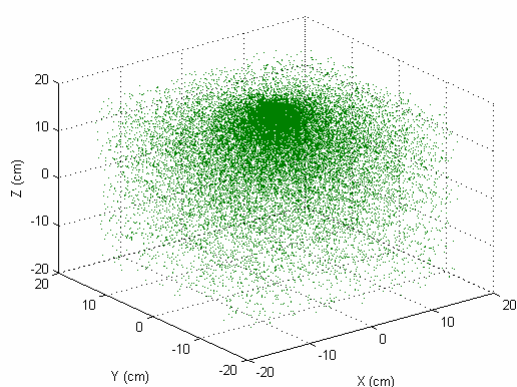
(a)



(b)



(c)



$^{22}\text{Na}$

$^{18}\text{F}$

**Figura 2. 23. Distribución espacial, obtenida mediante simulación Monte Carlo, de las posiciones en las que se ha producido la aniquilación de positrones en la Geometría A para los nucleidos  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$ . (a) En la fuente, la ventana y la carcasa de aluminio del detector. (b) En el blindaje de cobre. (c) En el aire.**

---

**Tabla 2. 11. Fracción de positrones aniquilados en las distintas partes del sistema detector/fuente/blindaje para los dos radionucleidos estudiados.**

Componente	$^{22}\text{Na}$	$^{18}\text{F}$
Blindaje Cu %	39,92	46,88
Aire %	28,63	26,38
Soporte de Polietileno %	29,73	24,68
Carcasa de aluminio %	0,91	1,13
Ventana de Carbón epoxy %	0,52	0,56
Germanio %	0,20	0,28

En la tabla 2.12 se presentan las eficiencias calculadas en la geometría A para  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$ , y se comparan con las eficiencias experimentales: en tanto por ciento y en términos de z-score.

**Tabla 2. 12. Eficiencias experimentales y calculadas en la geometría A para las fuentes de  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$ .**

	$^{22}\text{Na}$	$^{18}\text{F}$
Eficiencia experimental	$3,47 \times 10^{-3}$ (5)	$3,36 \times 10^{-3}$ (5)
Eficiencia Calculada	$3,43 \times 10^{-3}$ (4)	$3,33 \times 10^{-3}$ (4)
Diferencia %	1,22	0,78
Z-score	0,65	0,42

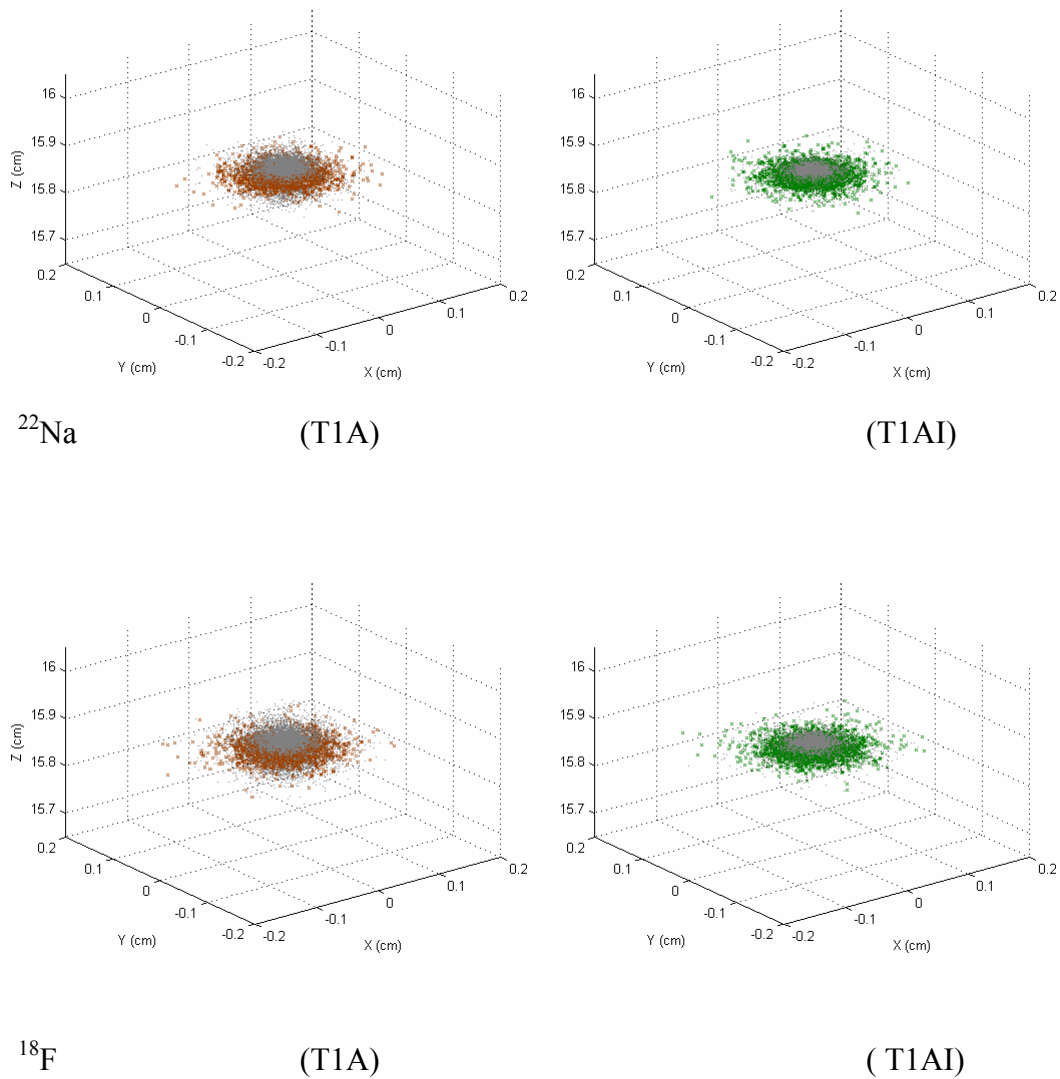
En primer lugar, se observa que las diferencias entre los resultados experimentales y calculados son compatibles con las incertidumbres experimentales y del cálculo. La mayor diferencia entre el valor experimental y el calculado se observa para el  $^{22}\text{Na}$ , ya que, debido a la emisión del positrón en coincidencia con un fotón de 1274 keV, se necesita realizar la corrección por suma en coincidencia. Sin embargo, no se ha realizado esta corrección, ya que requeriría un cálculo individual para cada punto en el que se produce la aniquilación.

Por otra parte, los resultados de los cálculos mantienen la diferencia, ya observada experimentalmente, entre la eficiencia obtenida para la fuente de  $^{22}\text{Na}$  y la de  $^{18}\text{F}$ . Esta diferencia puede atribuirse a la diferente distribución de los puntos en los que se aniquilan los positrones para los dos nucleidos considerados. Como muestra la tabla 2.11, en el  $^{18}\text{F}$  hay un mayor porcentaje de positrones aniquilados en el blindaje de cobre, que está más alejado del detector, y por tanto, tiene una menor eficiencia de detección. La diferente distribución espacial de las posiciones en las que se ha producido la aniquilación de positrones para los nucleidos  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$  se debe al

---

diferente espectro de energía de los positrones emitidos por los radionucleidos considerados. Los positrones emitidos por el  $^{18}\text{F}$  son más energéticos que los emitidos por el  $^{22}\text{Na}$  y, por tanto, pueden desplazarse más lejos de la fuente antes de aniquilarse.

A continuación se han simulado las configuraciones T1A, T2A y T1AI. En la figura 2.14 se presentan las distribuciones espaciales, obtenidas mediante simulación Monte Carlo, de las posiciones en las que se ha producido la aniquilación de positrones para las geometrías T1A y T1AI para los nucleidos  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$ .



**Figura 2. 24. Distribución espacial obtenida mediante simulación Monte Carlo de las posiciones en las que se ha producido la aniquilación de positrones en las geometrías T1A y T1AI para los nucleidos  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$ .**

En la figura 2.24 solo se han representado el soporte de la fuente de polietileno y los cilindros de aluminio (geometría T1A) y acero inoxidable (geometría T1AI), ya que todos los positrones emitidos se han aniquilado en estos materiales. En la tabla 2.13 se presentan las proporciones en las que ocurren las aniquilaciones en los distintos materiales.

**Tabla 2. 13. Fracción de positrones aniquilados en el soporte de la fuente de polietileno y los discos absorbentes para los dos radionucleidos y las tres geometrías estudiadas.**

Geometría	Material	$^{22}\text{Na}$	$^{18}\text{F}$
T1A	Polietileno %	41,70	36,31
	Aluminio %	58,30	63,69
T2A	Polietileno %	40,41	36,01
	Aluminio %	59,59	63,99
T1AI	Polietileno %	46,49	41,27
	Acero Inox. %	53,51	58,73

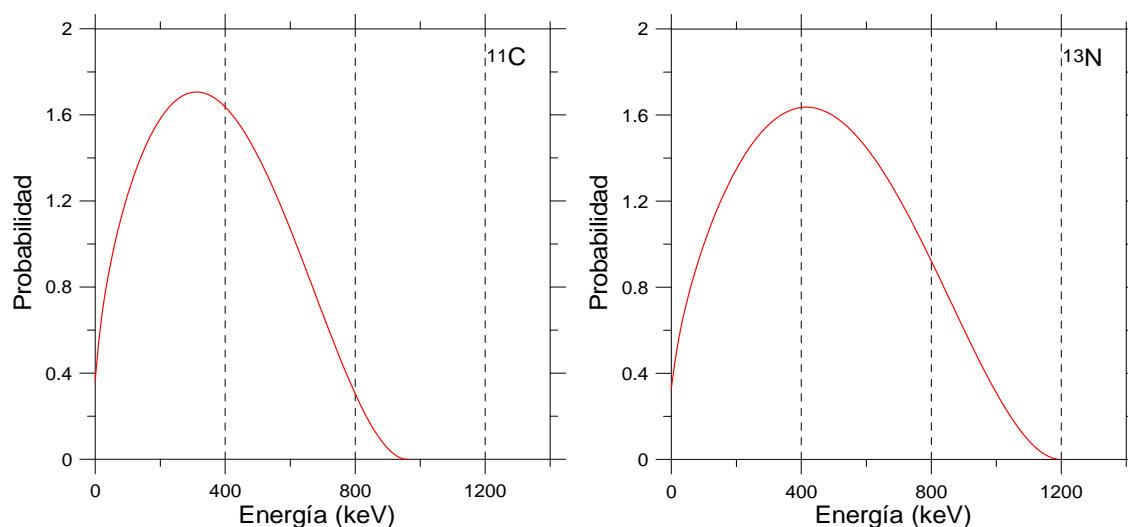
En primer lugar, se observa que no hay diferencias significativas entre las fracciones de positrones aniquilados en los distintos materiales calculados en la geometría T1A y T2A. Sin embargo, cuando el disco utilizado es de acero inoxidable, la fracción de aniquilaciones que se produce en el soporte de polietileno aumenta debido a que se produce una mayor retrodispersión de los positrones en el acero. Las diferencias entre las fracciones calculadas para los dos radionucleidos se suponen debidas al diferente espectro de energía de los positrones de los radionucleidos ensayados.

Para confirmar esta hipótesis, y estudiar la influencia de la energía del positrón en la distribución espacial de aniquilaciones, se han estudiado los radionucleidos  $^{11}\text{C}$  y  $^{13}\text{N}$ , que emiten positrones con espectros de energía más alta. Estos radionucleidos son, al igual que el  $^{22}\text{Na}$  y el  $^{18}\text{F}$ , nucleidos de interés en el campo de la medicina nuclear por su aplicación en la técnica de radiodiagnóstico PET.

El nucleido  $^{11}\text{C}$  se desintegra dando lugar a  $^{11}\text{B}$  por emisión  $\beta^+$  (99,75 %) y por captura electrónica (0,25 %), con un periodo de semidesintegración de 20,370 (29) minutos [1]. La desintegración  $\beta^+$  conduce a la emisión de dos fotones de aniquilación de 511 keV con una probabilidad de emisión muy alta ( $P_\gamma=199,500$  (26) %) [1].

El  $^{13}\text{N}$  se desintegra dando lugar a  $^{11}\text{C}$  por emisión  $\beta^+$  (99,8 %) y por captura electrónica (0,182 %), con un periodo de semidesintegración de 9,9670 (37) minutos [1]. La desintegración  $\beta^+$  conduce a la emisión de dos fotones de aniquilación de 511 keV con una probabilidad de emisión muy alta ( $P_\gamma=199,636$  (26) %) [1].

Los espectros de emisión  $\beta^+$  se han generado mediante el programa EFFY [60, 61]. La figura 2.25 presenta dichos espectros.



**Figura 2. 25. Distribuciones de Fermi para el espectro de energía de las partículas  $\beta^+$  emitidas en la desintegración del radionucleido  $^{11}\text{C}$  y  $^{13}\text{N}$ , utilizadas como dato de entrada en las simulaciones**

En la tabla 2.14 se presentan los resultados obtenidos en las simulaciones. Respecto a la geometría A se observa:

- El porcentaje de aniquilaciones en el blindaje aumenta con la energía del positrón.
- El porcentaje de aniquilaciones en el aire y el soporte de polietileno disminuye con la energía del positrón.
- En el resto de materiales (carcasa de aluminio, ventana y cristal de germanio) se observan variaciones en función de la energía del positrón, pero la contribución a la aniquilación en estos materiales es pequeña.

Con respecto a las geometrías T1A, T2A y T1AI, se observa:

- Todos los positrones se aniquilan en el soporte de la fuente de polietileno y el absorbente para los radionucleidos  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$  en todas las geometrías estudiadas.
- Para los radionucleidos  $^{11}\text{C}$  y  $^{13}\text{N}$ , en la geometría T1A, los positrones se aniquilan principalmente en el soporte de la fuente y en el disco de aluminio. Una fracción pequeña de positrones se aniquila en el blindaje y en el aire. En las geometrías T2A y T1AI todos los positrones se aniquilan en el soporte de la fuente y el absorbente.
- Se observa que, cuando la energía del positrón aumenta, disminuye la fracción de positrones aniquilados en el soporte de polietileno, incrementando, por tanto, la fracción aniquilada en el absorbente.

**Tabla 2. 14. Fracción de positrones aniquilados en los distintos materiales de dispositivo experimental para los radionucleidos y las geometrías estudiadas.**

Geometría	Material	$^{22}\text{Na}$ $E_{\text{max}}=545,6$ keV	$^{18}\text{F}$ $E_{\text{max}}=633,5$ keV	$^{11}\text{C}$ $E_{\text{max}}=960,5$ keV	$^{13}\text{N}$ $E_{\text{max}}=1198,5$ keV
A	Blindaje Cu %	39,92	46,88	62,66	70,98
	Aire %	28,63	26,38	19,74	16,03
	Soporte de Polietileno %	29,73	24,68	15,19	10,18
	Carcasa de aluminio %	0,91	1,13	1,40	1,66
	Ventana (Carbón epoxy) %	0,52	0,56	0,44	0,44
	Germanio %	0,20	0,28	0,45	0,55
T1A	Polietileno %	41,70	36,31	25,62	19,15
	Aluminio %	58,30	63,69	74,14	79,02
	Blindaje Cu %	0	0	0,15	1,32
	Aire %	0	0	0,08	0,40
T2A	Polietileno %	40,41	36,01	24,68	20,30
	Aluminio %	59,59	63,99	75,32	80,69
T1AI	Polietileno %	46,49	41,27	29,19	22,63
	Acero Inox. %	53,51	58,73	70,81	77,36

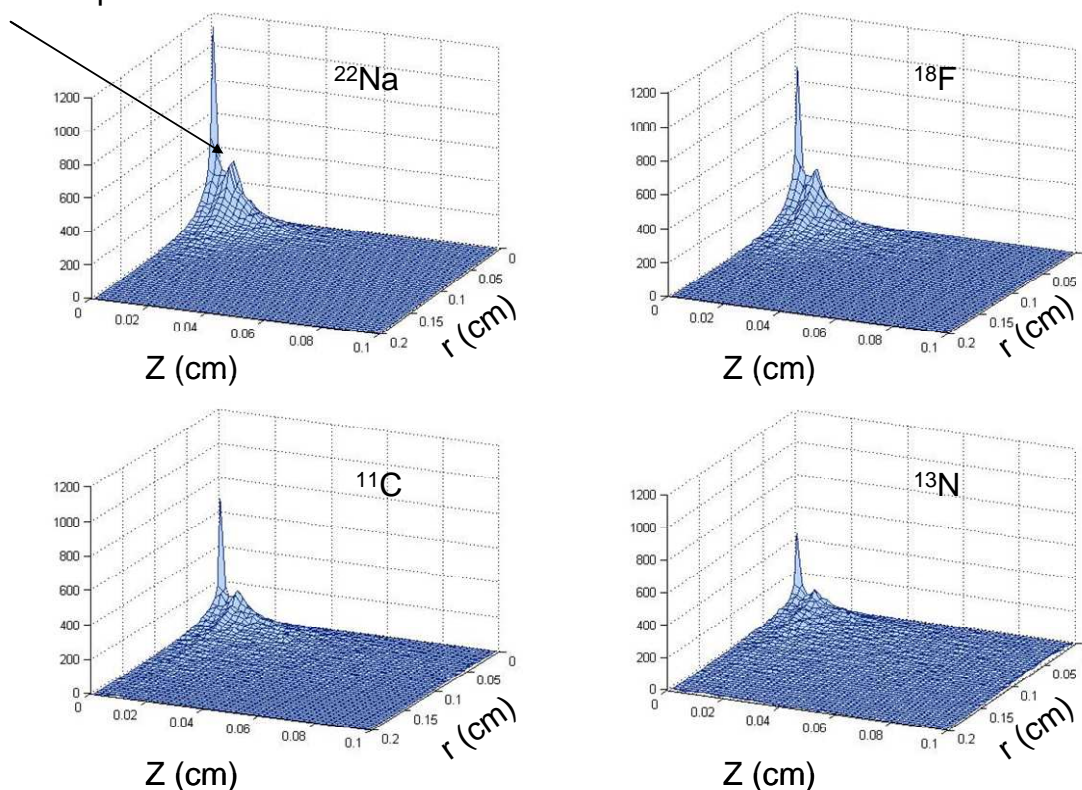
En la figura 2.26 se ha representado la distribución de las posiciones en las que se aniquilan los positrones de los distintos radionucleidos estudiados, en función del espesor del absorbente interpuesto ( $Z$ ), y el radio para un  $Z$  fijo,  $r$ :

$$r = \sqrt{X^2 + Y^2}$$

Para cada radionucleido se han simulado 20000 positrones primarios emitidos por la fuente.

En la figura 2.26 se puede ver que, cuando aumenta la energía de los positrones emitidos por la fuente disminuye la proporción de positrones aniquilados en las cercanías del punto de emisión y aumenta la proporción que se aniquila a una mayor distancia en el absorbente. Así, para el  $^{22}\text{Na}$ , en un espesor de 0,6 mm se aniquilan el 99,9 % de los positrones, mientras que para el  $^{13}\text{N}$  se necesita un espesor de 1,2 mm para una proporción similar.

Interfase polietileno/aluminio



**Figura 2. 26.** Distribución de las posiciones en las que se aniquilan los positrones para los distintos nucleidos simulados cuando se utiliza un absorbente de aluminio. Z es la distancia vertical desde el punto de emisión. r es la distancia radial para un z fijo.

Se puede, por tanto, concluir que para los radionucleidos  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$ , y con la geometría T1A (dos cilindros de 1 mm de espesor), se tiene el espesor suficiente para que todos los positrones se aniquilen cerca de la fuente emisora. En el caso de los radionucleidos  $^{11}\text{C}$  y  $^{13}\text{N}$  se necesita un espesor mayor, o un material más pesado, como los de las geometrías T2A y T1AI.

En la tabla 2.15 se presentan las eficiencias calculadas en las geometrías T1A, T2A y T1AI para los radionucleidos estudiados. También, en el caso de los radionucleidos  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$ , su comparación con las eficiencias experimentales en tanto por ciento y en términos de *z-score*. Como se ve en la tabla 2.15, las diferencias entre los valores experimentales y calculados son menores del 1 %, y con un *z-score* menor de 1, en todos los casos en los que se disponen de datos experimentales. Este era el objetivo inicial del trabajo. Por tanto, se puede concluir que mediante la utilización de piezas absorbentes adecuadamente diseñadas se puede medir fotones de aniquilación de positrones con eficiencias similares a las de fotones de energía parecida.

**Tabla 2. 15. Eficiencias experimentales y calculadas en la geometría T1A, T2A y T1AI para las fuentes de  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$ .**

Geometría		$^{22}\text{Na}$	$^{18}\text{F}$	$^{11}\text{C}$	$^{13}\text{N}$
T1A	Eficiencia experimental x $10^{-3}$	2,56 (5)	2,52 (3)		
	Eficiencia Calculada x $10^{-3}$	2,54 (5)	2,51 (5)	2,50 (3)	2,53 (4)
	Diferencia %	0,53	0,49		
	Z-score	0,20	0,21		
T2A	Eficiencia experimental x $10^{-3}$	2,47 (3)	2,43 (3)		
	Eficiencia Calculada x $10^{-3}$	2,49 (4)	2,45 (4)	2,45 (3)	2,45 (3)
	Diferencia %	-0,76	-0,85		
	Z-score	-0,40	-0,41		
T1AI	Eficiencia experimental x $10^{-3}$	2,51 (3)	2,40 (3)		
	Eficiencia Calculada x $10^{-3}$	2,48 (5)	2,43 (5)	2,44 (4)	2,47 (3)
	Diferencia %	0,99	-1,11		
	Z-score	0,46	-0,41		





### **3. EL CONCEPTO DE OPTIMIZACIÓN NUMÉRICA APLICADO A LOS MÉTODOS DE MONTE CARLO. APLICACIÓN AL PROBLEMA DE LA OPTIMIZACIÓN DE MODELOS NUMÉRICOS DE DETECTORES.**

#### **3.1. INTRODUCCIÓN**

La medida de fuentes sólidas y líquidas por espectrometría gamma requiere la optimización previa de la geometría de medida, que está compuesta por el detector y el contenedor de la fuente (botellas, cajas Petri o contenedores especiales como, por ejemplo, de tipo Marinelli). Habitualmente, esto se realiza mediante la medida de una serie de patrones en varias geometrías o mediante cálculos de Monte Carlo. En la literatura se pueden encontrar distintos trabajos sobre optimización de diferentes modelos de medida [38, 89-91], aunque su utilidad está restringida a sistemas con detectores, contenedores y matrices de medida similares. Frecuentemente se necesitan estudios adicionales para la optimización de un sistema de medida particular.

En este capítulo se propone un método de optimización basado en métodos numéricos. Para aplicarlo debe definirse, en primer lugar, una función de la magnitud que se quiere optimizar. Normalmente ésta suele ser la eficiencia. Esta función tendrá en cuenta la respuesta del detector y puede consistir en una expresión analítica o en el resultado de un cálculo de Monte Carlo. En ambos casos, dependerá de una serie de parámetros que caracterizarán el detector, la fuente de radiación y el contenedor. La optimización del sistema de medida se reduce, de esta forma, a encontrar una serie de parámetros óptimos que minimice o maximice la función. Si el detector ha sido caracterizado previamente, los únicos parámetros que se optimizarán corresponden a las dimensiones del contenedor.

En general, las expresiones que definen la eficiencia conducen a sistemas no lineales, los cuales se resuelven mediante métodos iterativos. La aplicación de estos a la optimización de contenedores es el objeto del trabajo descrito en este capítulo.

El sistema de medida que estudiamos aquí está formado por un detector de Germanio de rango extendido. Se han estudiado las dimensiones óptimas de medida de muestras líquidas en dos tipos de contenedores: botellas de plástico y un tipo de contenedor especial, muy utilizado en la medida de fuentes radiactivas extensas mediante espectrometría gamma, conocido como contenedor de tipo Marinelli. Este



**Figura 3. 1. Diferentes tipos de contenedores utilizados para la medida de muestras sólidas y líquidas mediante espectrometría gamma.**

tipo de contenedor fue diseñado por L.D. Marinelli [92] con el propósito de maximizar la eficiencia de detección para muestras de gran volumen por el procedimiento de hacer que ésta se sitúe rodeando al detector. Esta configuración es la opuesta a la utilizada en las medidas con detectores de pozo; en estos se introduce una muestra de pequeño

---

volumen en una cavidad interior del detector que la rodea por completo. Basados en este principio, existen contenedores de este tipo de diferentes tamaños y volúmenes, aunque la configuración más extendida es la que permite medir muestras líquidas, sólidas e incluso gaseosas [33] en volúmenes del orden de 1 litro. En la figura 3.1 se muestran fotografías de varios tipos de contenedor. En general son de material plástico, con una base anular cuyas dimensiones se ajustan al diámetro externo del detector en el cual encaja el contenedor. Los detectores pueden ser de semiconductor (Ge) o centelleo (NaI(Tl)).

La función que se optimiza la debe definir el usuario de forma que se contemplen las características más relevantes de cada necesidad de medida. Algunos ejemplos de criterios de optimización pueden ser la obtención de la eficiencia máxima en un determinado rango de energía, o para un determinado nucleido, o bien para una mezcla de varios.

Como en todos los métodos iterativos, se comienza con una serie de valores iniciales de los parámetros, que se actualizan en cada iteración. El proceso iterativo continúa hasta que se cumple el criterio de convergencia.

Aunque las eficiencias de detección se han calculado con el código PENELOPE [47], los métodos que se describen en este apartado son de aplicación general a resultados obtenidos con otros códigos o con expresiones analíticas.

### **3.2. APLICACIÓN AL PROBLEMA DE LA OPTIMIZACIÓN NUMÉRICA DE DETECTORES**

Para un sistema de medida particular, la eficiencia de recuento es una función del detector y de la fuente. En medidas ambientales, la fuente habitualmente se introduce en un contenedor que se diseña especialmente para este propósito. La selección de la combinación óptima del detector y el contenedor es un aspecto crítico en el diseño de un sistema de medida eficiente.

La eficiencia de recuento para un fotón gamma de energía  $E_\gamma$  se puede expresar como:

$$\varepsilon = F(p_{di}, p_{cj})$$

Donde  $\varepsilon$  es la eficiencia del pico fotoeléctrico definida de la forma habitual,  $p_{di}$  representa todos los parámetros necesarios para la descripción completa del detector y  $p_{cj}$  son los parámetros necesarios para la descripción del contenedor y las características de la fuente. La función  $F$  puede ser tanto una función analítica como un modelo de Monte Carlo que proporcione un valor de la eficiencia [75] para cada conjunto de parámetros. Desde el punto de vista matemático, el problema de hallar el sistema de medida óptimo se reduce a encontrar el valor máximo de una función de la eficiencia. En la formulación más simple del problema,  $F$  dependerá únicamente de un valor dado de energía.

Por simplicidad, se asume que el detector ha sido caracterizado completamente. En este caso, se conocen los valores de  $p_{di}$  y el problema se reduce a encontrar el conjunto de parámetros  $p_{cj}$  que o bien maximice la eficiencia de detección ( $\varepsilon$ ) para la medida de fotones gamma de una determinada energía, o bien que maximice una función que sea una combinación de eficiencias.

Una aproximación directa al problema de encontrar  $p_{cj}$  es el cálculo de una serie de valores de la eficiencia en una región cercana a la posición donde se estime que se encuentra el máximo. Esta es una estrategia razonable si se dispone de una expresión analítica para  $\varepsilon$ ; pero es muy ineficiente si se utiliza un modelo de Monte Carlo y el número de parámetros es mayor que uno.

Para resolver el problema de la optimización de una función se han desarrollado un buen número de algoritmos numéricos [74, 93]. La mayor parte de ellos se pueden adaptar para la resolución del problema que se plantea en este trabajo, aunque con distinta eficacia. En los siguientes apartados se presentan los resultados para dos sistemas típicos de medida de radionucleidos. Ambos están basados en el detector de Germanio de rango extendido de CANBERRA con ventana de carbón epoxy descrito en el capítulo 2. Para los cálculos que se realicen en este estudio se utilizará el modelo de Monte Carlo, ya optimizado y validado [68] para este detector, añadiéndole la estructura de la fuente radiactiva volúmica y su contenedor.

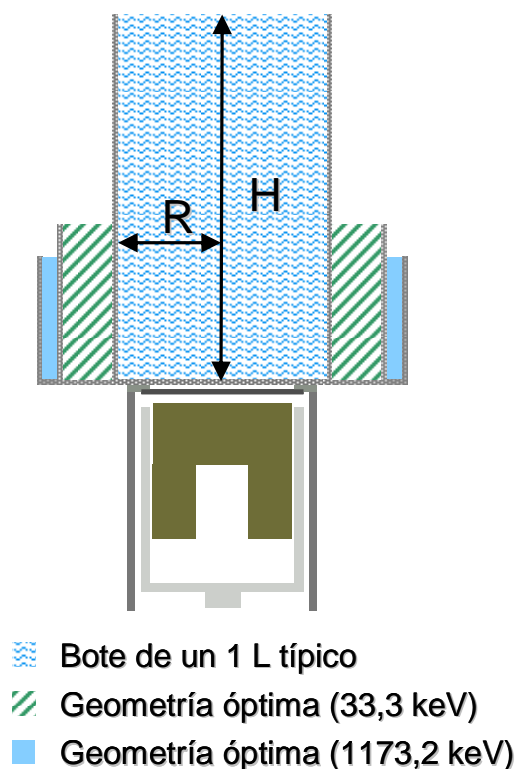
En la tabla 3.1 se presentan los radionucleidos y energías de los fotones gamma seleccionados. El criterio para la selección ha sido, por un lado, abarcar un rango amplio de energía (entre 33 y 1173 keV); por otro, utilizar radionucleidos recomendados para la calibración en eficiencias de detector de Germanio por ser emisores monoenergéticos [62]. Para ello se han incluido  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{85}\text{Sr}$ , así como dos de los radionucleidos de los de mayor importancia en los estudios de muestras ambientales:  $^{241}\text{Am}$  y  $^{131}\text{I}$ .

**Tabla 3. 1. Datos Nucleares de los radionucleidos utilizados en la calibración del detector: nucleido, periodo de semidesintegración, energía del fotón emitido y probabilidad de emisión.**

Nucleido	$T_{1/2}$	E (keV)	$P_e$ (u $P_e$ )
$^{241}\text{Am}$	432,6 (6) a	59,54	0,3578 (9)
$^{139}\text{Ce}$	137,641 (20) d	165,86 $X_{K\alpha}$ 33,3	0,7990 (4) 0,6370 (54)
$^{57}\text{Co}$	271,80 (5) d	122,06	0,8551 (6)
$^{60}\text{Co}$	5,2710 (8) a	1173,23 1332,49	0,9985 (3) 0,999826 (6)
$^{137}\text{Cs}$	30,05 (8) a	661,66	0,8499 (20)
$^{131}\text{I}$	8,0233 (19) d	364,5	0,812 (8)
$^{85}\text{Sr}$	64,850 (7) d	514,00	0,985 (4)

### 3.2.1. Problema unidimensional. Optimización de la medida en un bote de plástico

A continuación se discute la optimización de un sistema de medida formado por un detector y un bote de polipropileno que contiene 1 L de solución acuosa (ver figura 3.2). Si los parámetros del detector son conocidos, la optimización se reduce a un problema unidimensional con un único parámetro: el radio del bote. Para abordar este problema se han ensayado dos tipos de algoritmo: el método de Newton y el de la bisección.



**Figura 3. 2.** Vista esquemática del primer sistema de medida cuya optimización se describe en el trabajo. Una muestra líquida de 1 L de volumen se encuentra contenida en un bote de polipropileno. En la figura se muestra la forma más común de este tipo de botes así como las formas óptimas para dos energías distintas.

### El método de la bisección

Con este método la función es evaluada en los límites de un intervalo  $[x_L, x_R]$ . El intervalo se acorta sucesivamente de acuerdo con el valor que toma la función en los límites del intervalo y el signo de la derivada. En cada interacción, el intervalo se divide en dos mitades y se cambia uno de los límites del nuevo intervalo: bien  $x_{L+1} = (x_L + x_R)/2$  o  $x_{R+1} = (x_L + x_R)/2$  según sea el signo de la derivada en el nuevo punto. La figura 3.3 muestra los resultados de la aplicación de este algoritmo para el caso de un fotón con una energía de 59,54 keV. En este caso, el parámetro optimizado ( $x = H/R$ ) corresponde a la relación entre la altura ( $H$ ) y el radio del bote ( $R$ ). La elección del nuevo intervalo se hace de forma que el signo de la derivada sea positivo en el punto situado en la izquierda del intervalo, y negativo en el situado a la derecha. La derivada se calcula numéricamente. La expresión utilizada para su cálculo ha sido la siguiente:

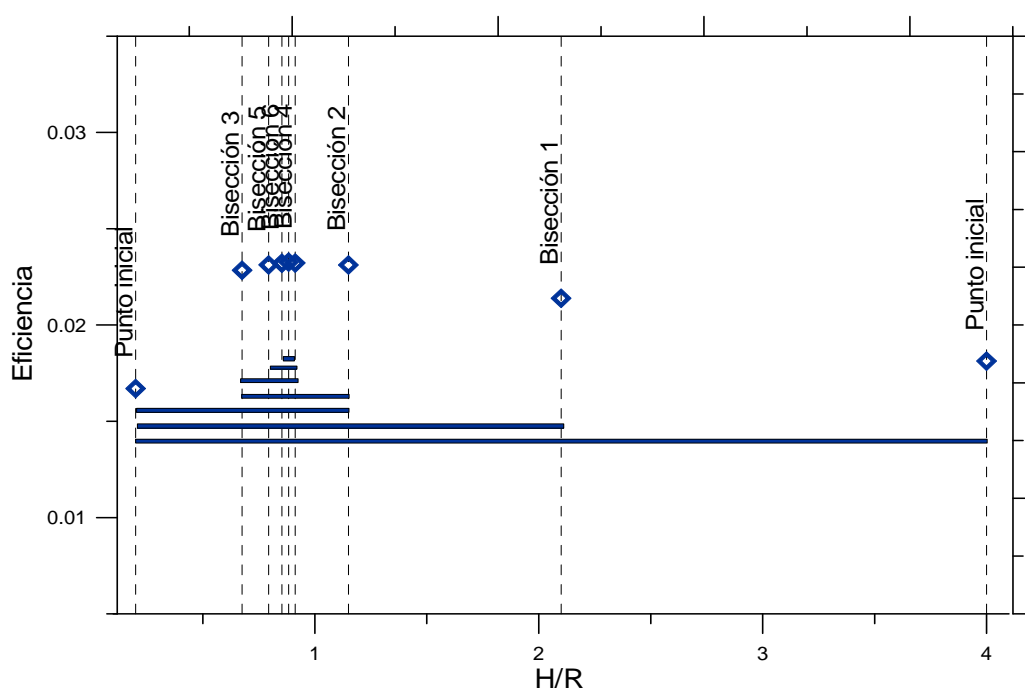
$$\frac{d\varepsilon}{dx} = \frac{\varepsilon(x + \Delta x) - \varepsilon(x)}{\Delta x}$$

El valor de la eficiencia fotoeléctrica en cada punto se evalúa para cada energía mediante la simulación del sistema de medida con el código PENELOPE. Su valor se obtiene a partir del espectro de energía depositado en el detector, es decir:

$$\varepsilon = \Delta E \cdot d_E,$$

donde  $\Delta E$  es el incremento de energía depositada (eV) y  $d_E$  es la densidad de probabilidad de energía depositada en el detector (1/eV).

El valor de  $\Delta x$  se ajusta de manera que la diferencia entre el valor de la función en el punto estudiado y el incrementado sea estadísticamente significativo.



**Figura 3. 3.** Algoritmo de optimización, con el método de la bisección, de las dimensiones de un bote para la medida por espectrometría gamma mediante un detector de Germanio de rango extendido de un emisor de fotones de energía 59,54 keV. Se presentan los puntos en los que la función ha evaluado y la anchura de los intervalos resultantes.

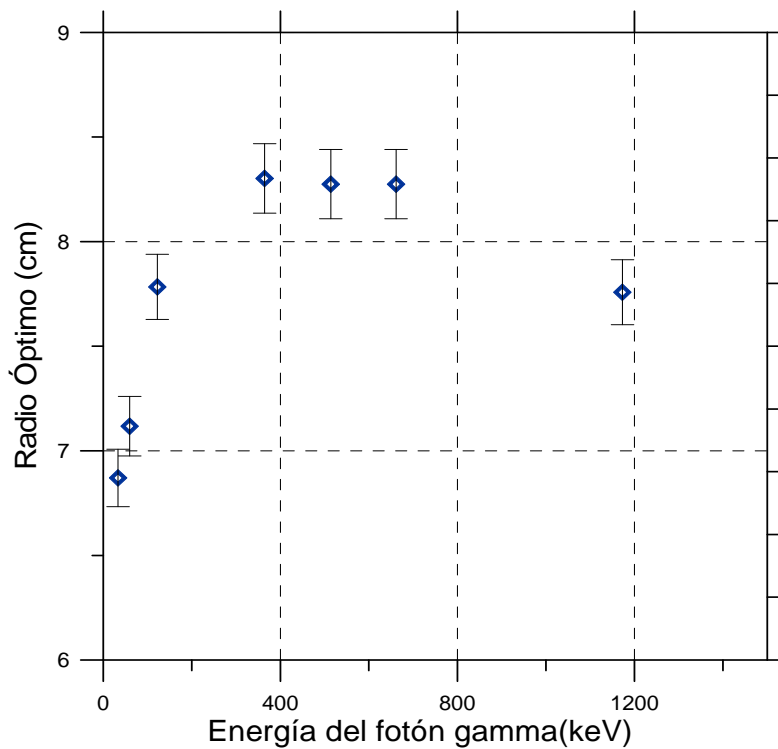


Después de un cierto número de bisecciones, el intervalo se reduce a una región que contiene a la solución. En la implementación seguida en este trabajo, el criterio para terminar la iteración ha sido:

$$|\varepsilon(x_L) - \varepsilon(x_R)| < \min[u(\varepsilon(x_L)), u(\varepsilon(x_R))]$$

Donde  $\varepsilon(x)$  y  $u(\varepsilon(x))$  son la eficiencia fotoeléctrica de detección del sistema de medida y la incertidumbre estadística del cálculo, respectivamente. Este último dato se obtiene a partir de la incertidumbre estadística de la densidad de probabilidad de energía depositada en el detector que proporciona la salida del código PENELOPE.

Los resultados obtenidos para la optimización del sistema de medida mostrado en la figura 3.2 para las energías indicadas en la tabla 3.1 se presentan en la figura 3.4.



**Figura 3. 4. Resultados de la optimización del sistema de medida presentado en la figura 3.2 en términos del radio de la botella frente a la energía del fotón gamma. El cálculo de la eficiencia y su incertidumbre se ha realizado mediante la simulación Monte Carlo del sistema de medida con el código PENELOPE. El algoritmo utilizado para la optimización numérica ha sido el de la bisección.**

En la tabla 3.2 se compara la eficiencia del contenedor optimizado con la eficiencia de un bote estándar de 1 L. Se puede ver que el proceso de optimización permite una mejora significativa en la eficiencia de recuento del sistema. Se observa, también, que la forma óptima depende de la energía de la radiación que se quiere medir, y que no hay una única solución para el sistema de medida. El número de bisecciones necesarias para alcanzar el criterio de convergencia, presentado en la tabla, es un indicador de la eficiencia del algoritmo. El número de partículas primarias simuladas en cada cálculo de eficiencia ha sido de  $4 \times 10^7$ . En la figura 3.5 se ha representado una imagen en tres dimensiones del valor de la eficiencia en función de la energía del fotón gamma simulado y del radio del contenedor considerado.

**Tabla 3. 2. Resultados del proceso de optimización para la medida de una disolución acuosa en una botella de polipropileno de 1 L, para las energías gamma seleccionadas. Se ha utilizado un detector de Ge de rango extendido con ventana de carbón-epoxy. El radio y el diámetro de la botella inicial miden 4,4 y 15,7 cm respectivamente.**

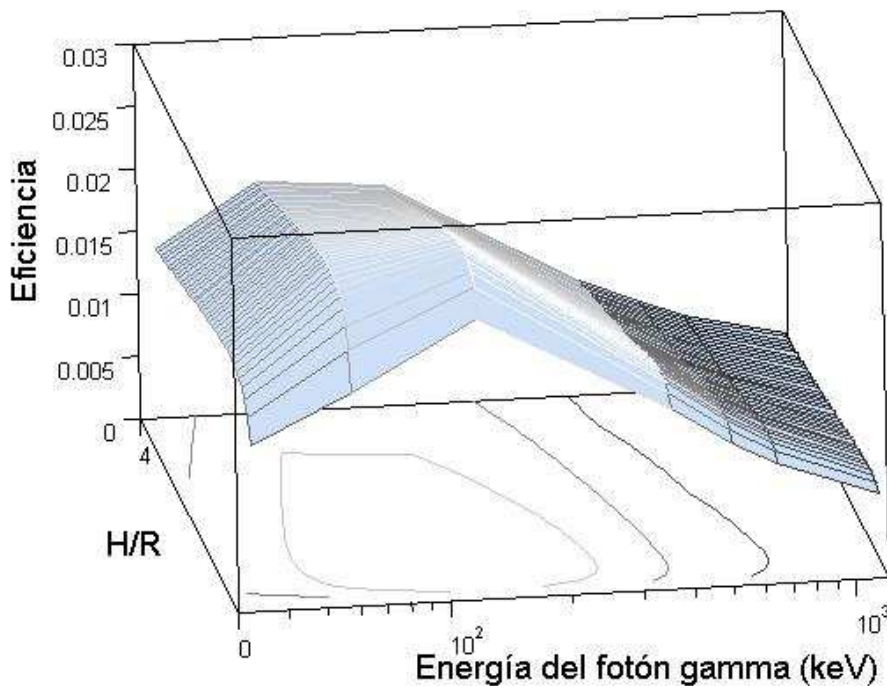
Energía del Fotón (keV)	Nucleido	Número de Bisecciones	Eficiencia del bote inicial	Eficiencia del bote optimizado	Radio y Altura del bote optimizado
<b>33,3</b>	<sup>139</sup> Ce	6	1,42 10 <sup>-2</sup>	1,68 10 <sup>-2</sup>	6,87 / 6,74
<b>59,54</b>	<sup>241</sup> Am	7	1,89 10 <sup>-2</sup>	2,33 10 <sup>-2</sup>	7,12 / 6,28
<b>122,06</b>	<sup>57</sup> Co	6	1,88 10 <sup>-2</sup>	2,56 10 <sup>-2</sup>	7,78 / 5,25
<b>364,5</b>	<sup>131</sup> I	5	1,00 10 <sup>-2</sup>	1,51 10 <sup>-2</sup>	8,30 / 4,62
<b>514</b>	<sup>85</sup> Sr	6	7,79 10 <sup>-3</sup>	1,18 10 <sup>-2</sup>	8,27 / 4,65
<b>661,66</b>	<sup>137</sup> Cs	6	6,52 10 <sup>-3</sup>	9,90 10 <sup>-3</sup>	8,27 / 4,65
<b>1173,2</b>	<sup>60</sup> Co	6	4,47 10 <sup>-3</sup>	6,68 10 <sup>-3</sup>	7,75 / 5,29

En la figura 3.5 se observa la variación de la eficiencia fotoeléctrica, en función tanto de la energía de la radiación gamma como del cociente entre la altura y el radio de la botella. Así, se puede ver cómo la curva tiene una pendiente muy suave alrededor del máximo de la eficiencia para cada energía.

### El método de Newton

Una alternativa al método presentado es el método de Newton, el cual requiere el cálculo de la derivada de la función que se va a optimizar. En teoría, los algoritmos que utilizan la derivada deben proporcionar tasas de convergencia más rápidas en la mayor parte de los casos. Sin embargo, en este caso no se dispone de una función analítica de la eficiencia y, por tanto, la derivada de la función debe calcularse numéricamente. Esto se puede hacer utilizando, por ejemplo, la siguiente expresión:

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial p_{cj}} = \frac{\varepsilon(p_{di}, p_{cj} + \Delta p_{cj}) - \varepsilon(p_{di}, p_{cj})}{\Delta p_{cj}}$$



**Figura 3. 5. Representación en tres dimensiones de la eficiencia de pico fotoeléctrico en función de la energía de la radiación gamma y del cociente entre la altura y el radio de la botella.**

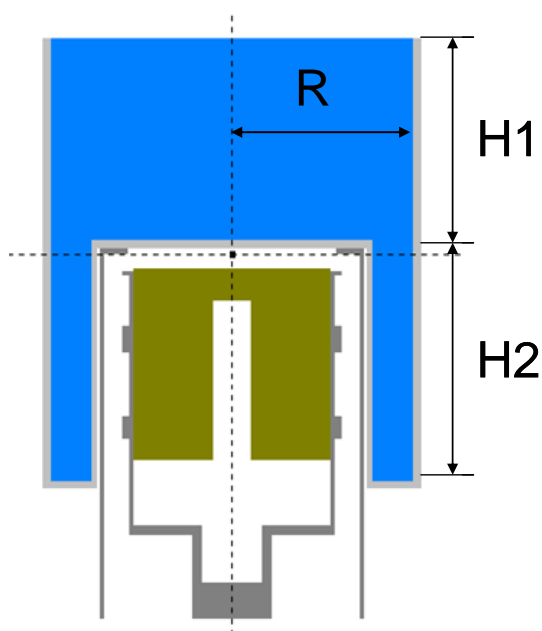
El cálculo del valor de esta expresión implica calcular el de la eficiencia en dos puntos muy cercanos (por definición,  $\Delta p$  tiene que ser pequeño). Por consiguiente, se necesitan tiempos de cálculo muy largos para una estimación precisa de la derivada, lo

que hace el método ineficiente. El hecho de que la curva de la eficiencia tenga una pendiente pequeña contribuye a agravar el problema.

### 3.2.2. Problema bidimensional. Optimización de una geometría de medida de tipo Marinelli

#### 3.2.2.1 Introducción

Se ha estudiado también el problema de la optimización de un sistema de medida cilíndrico de tipo Marinelli que contiene la misma solución radiactiva descrita en la sección precedente. En la figura 3.6 se representa un esquema del sistema. Para un volumen constante de solución, los parámetros  $H1$  y  $H2$  (ver la figura 3.6) caracterizan completamente el contenedor.



**Figura 3. 6. Vista esquemática del sistema de medida bidimensional cuya optimización se describe en el trabajo. Una muestra líquida de 1 L de volumen contenido en un contenedor de tipo Marinelli de polipropileno.**

Por las razones ya mencionadas anteriormente, se han descartado aquellos métodos que requieren el cálculo de la matriz de derivadas de la función eficiencia del sistema de medida. Se deben utilizar, por tanto, métodos basados en el cálculo directo de la función. De estos métodos, uno de los más robustos es el propuesto por Nelder y

Mead [93], que pertenece al tipo de algoritmo conocido como métodos “simplex”. Se conoce como “simplex” en un espacio  $R^n$ , un poliedro que tiene  $n+1$  vértices. Cada vértice,  $V_i$ , se caracteriza por un vector de posición  $v_i$  y un valor de la función  $f_i(v_i)$  que se quiere evaluar. Existen una serie de reglas que sirven para cambiar los vectores de posición de los vértices del simplex. Para su implementación, se requiere evaluar la función en los vértices en cada momento del proceso iterativo. De esta forma se genera una secuencia que desplaza y cambia la forma del simplex en cada iteración. Si estas reglas permiten que al final de la secuencia generada se obtenga un simplex que contenga un mínimo o, en este caso, un máximo de la función ( $f$ ) entonces se puede utilizar el método para encontrar el mínimo (en este caso el máximo) de la función. La precisión de la estimación depende de tamaño del simplex final que contiene el máximo o el mínimo de la función.

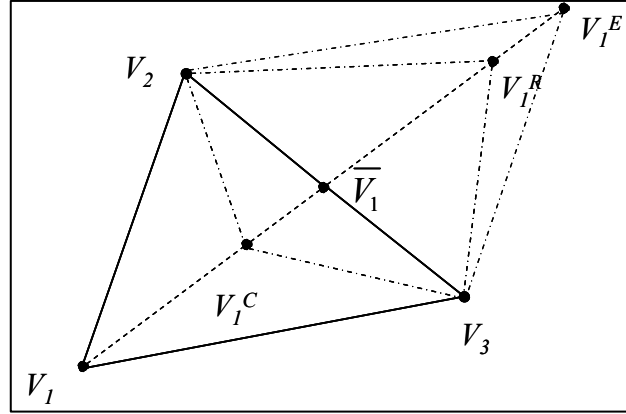
En este caso, al haber únicamente dos variables independientes, cada simplex tendrá tres vértices. La función que hay que optimizar ( $\varepsilon$ ) se evalúa en cada vértice implementando las reglas de decisión en el algoritmo, con el fin de modificar los vértices del simplex mediante una combinación de reflexiones, contracciones y expansiones. De esta forma, se va generando una secuencia de simplex hasta que se alcanza un criterio de convergencia apropiado.

El procedimiento estándar de Nelder y Mead [93] se ha modificado ligeramente para tener en cuenta que se está buscando un máximo de la función en lugar de un mínimo. Como en el método de Nelder y Mead, cada simplex puede deformarse de tres formas para producir el siguiente simplex. En dos dimensiones, con un simplex definido a partir de tres vértices ( $V_1, V_2$  y  $V_3$ ) definimos  $\overline{V}_1$  con el vector de posición:

$$\overline{v}_1 = \frac{v_2 + v_3}{2}$$

El simplex inicial puede deformarse mediante reflexión, contracción y expansión a lo largo del eje  $V_1\overline{V}_1$ , según se ilustra en la figura 3.7.

Se define  $V_h$  como el vértice del simplex donde se obtiene un valor de la función máximo ( $f_h$ ),  $V_l$  como el vértice donde se obtiene un valor de la función mínimo ( $f_l$ ) y  $\bar{V}_l$  como el centroide de los vértices opuestos a  $V_l$ . De forma que la dirección  $V_l\bar{V}_l$  será la dirección en la cual la función  $f$  aumenta su valor.



**Figura 3. 7.-Deformaciones del simplex inicial ( $V_1, V_2, V_3$ ) por reflexión ( $V_1^R$ ), contracción ( $V_1^C$ ) y expansión ( $V_1^E$ ).**

El proceso iterativo adaptado se resume a continuación:

Se calcula el vector de posición  $V_l^R = \bar{V}_l + \alpha(\bar{V}_l - V_l)$ , donde  $\alpha$  es un número entre 0 y 1.

Se evalúa la función en  $V_l^R$  ( $f_l^R$ ).

- Si  $f_l < f_l^R < f_h$ , entonces reemplazamos  $V_l$  por  $V_l^R$  y obtenemos un **nuevo simplex**.

- Si  $f_l^R > f_h$ , significa que hemos obtenido un nuevo máximo de la función y debemos seguir investigando en esa dirección. Por tanto, expandimos

$$V_l^E = \bar{V}_l + \eta(V_l^R - \bar{V}_l),$$

donde  $\eta$  es un número mayor que 1, y calculamos el valor de la función en  $V_l^E$  ( $f_l^E$ ).

- Si  $\underline{f_l^E} > f_h$ , reemplazamos  $V_l$  por  $V_l^E$  y obtenemos un **nuevo simplex**.
- Si  $\underline{f_l^E} < f_h$ , nos hemos desplazado demasiado en la dirección  $V_l \bar{V}_l$ . En este caso reemplazamos  $V_l$  por  $V_l^R$  y obtenemos un **nuevo simplex**.
- Si  $f_l^R < f_l$ , contraemos

$$V_l: V_l^C = \bar{V}_l + \lambda(V_l - \bar{V}_l),$$

donde  $\lambda$  es un número entre 0 y 1, y calculamos el valor de la función en  $V_l^C$  ( $f_l^C$ ).

- Si  $\underline{f_l^C} < \max\{f_l, f_l^R\}$ , construimos un nuevo simplex reemplazando cada  $V_i$  por:

$$V_i = \frac{V_i + V_h}{2};$$

es decir, **se reduce el tamaño del simplex inicial** a la mitad del tamaño del original manteniendo el vértice donde se encuentra el máximo de la función.

- Finalmente, si  $\underline{f_l^C} > \max\{f_l, f_l^R\}$ , reemplazamos  $V_l$  por  $V_l^C$  y obtenemos un **nuevo simplex**.

A partir del nuevo simplex construido se repite el proceso y así obtenemos una secuencia de simplex que irán cambiando de forma y tamaño hasta que se cumpla el criterio de convergencia:

$$\frac{1}{3} \sum_{i=1}^3 (f_i - \bar{f})^2 < \varepsilon$$

$$\text{con } \bar{f} = \frac{1}{3} \sum_{i=1}^3 f_i$$

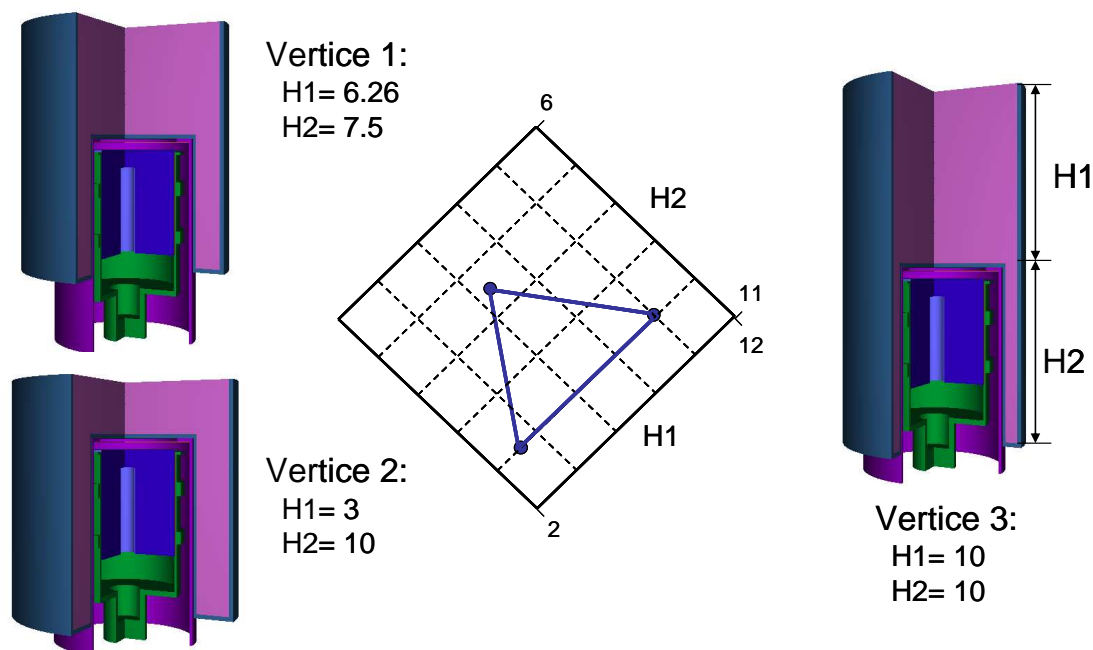
y  $\varepsilon$  es un número mayor que 0 suficientemente pequeño.

### 3.2.2.2 Aplicación

La figura 3.8 presenta una descripción gráfica del simplex inicial. Este lo forman tres contenedores, cada uno con un par de parámetros  $H1$  y  $H2$  dados, para describir los

---

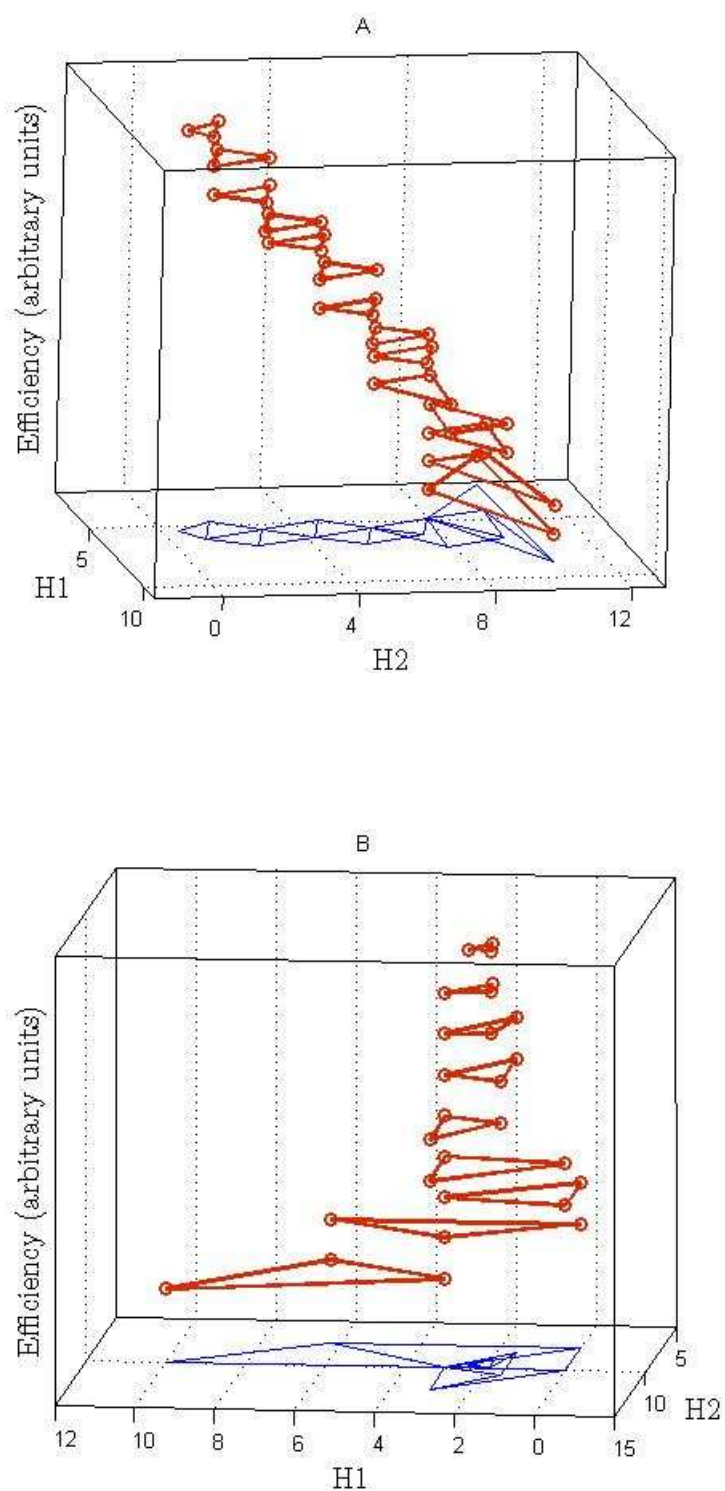
vértices del simplex inicial. Cada uno de estos vértices corresponde a una entrada de datos para la simulación del sistema completo. Para la representación gráfica se ha utilizado el SOFTWARE GVIEW incluido en el código PENELOPE.



**Figura 3. 8.- Representación gráfica del simplex inicial para la optimización de la geometría bidimensional, que corresponde a un contenedor de tipo Marinelli con una muestra acuosa de 1L.**

Para obtener la configuración óptima, se ha generado una secuencia de simplex para cada energía considerada. La iteración termina cuando se alcanza el criterio de convergencia apropiado. La figura 3.9 presenta la secuencia de simplex para las energías 33,3 keV y 1173 keV. Se han representado los simplex iniciales en la parte inferior de la gráfica, y los generados por el algoritmo se han situado en planos ascendentes; el valor final es el situado en la parte más alta. Como se puede ver en la figura 3.9, para las dos energías representadas, los vértices del simplex final (parte alta de la gráfica) se han situado fuera de la región limitada por el simplex inicial (parte baja), es decir: el algoritmo implementado permite que, aunque el simplex inicial no acote la solución, los vértices de cada simplex se desplacen durante el proceso iterativo hasta la región donde se encuentre la solución al problema.





**Figura 3. 9. Secuencia de simplex generados en la optimización del sistema de medida bidimensional. Energía del fotón simulado: A) 33,3 keV; B) 1174 keV. El valor de la eficiencia se ha representado en unidades arbitrarias y se ha escalado en cada simplex con el único objetivo de obtener una vista clara de la evolución de los respectivos vértices.**

En la tabla 3.3 se presentan los resultados numéricos para todas las energías estudiadas.

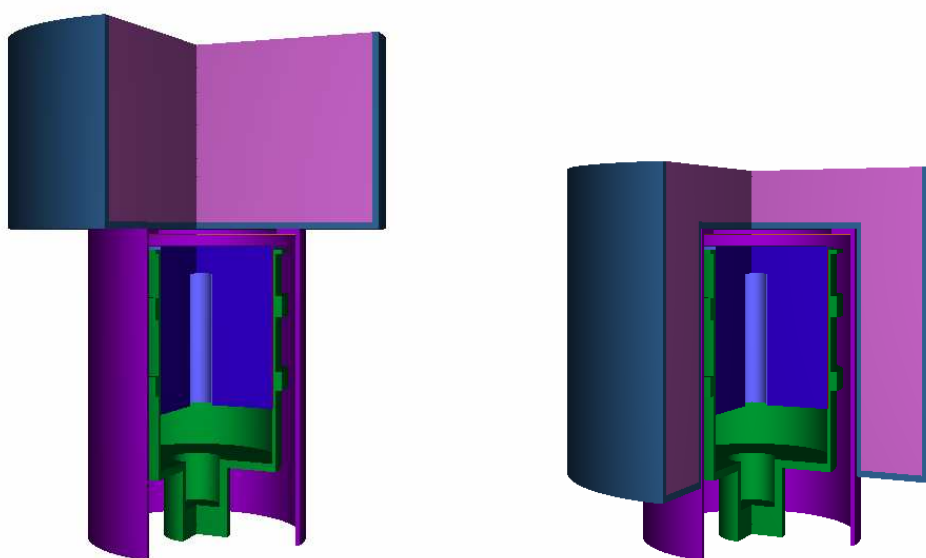
**Tabla 3. 3. Resultados del proceso de optimización de la medida de una solución acuosa en un contenedor de tipo Marinelli de 1 L para las energías gamma seleccionadas. H1 y H2 son 6,26 cm y 7,5 cm para el contenedor de tipo Marinelli estándar.**

Energía del fotón (keV)	Nucleido	Número de simplex	Eficiencia de un Marinelli estándar	Eficiencia de un Marinelli optimizado	Valor de H1/H2
33,3	<sup>139</sup> Ce	6	1,59 10 <sup>-2</sup>	1,68 10 <sup>-2</sup>	6,74 / 0
59,54	<sup>241</sup> Am	7	2,25 10 <sup>-2</sup>	2,37 10 <sup>-2</sup>	6,26 / 2,00
122,06	<sup>57</sup> Co	6	3,57 10 <sup>-2</sup>	3,85 10 <sup>-2</sup>	3,66 / 9,72
364,5	<sup>131</sup> I	5	2,36 10 <sup>-2</sup>	2,70 10 <sup>-2</sup>	2,60 / 9,00
514	<sup>85</sup> Sr	6	1,83 10 <sup>-2</sup>	2,10 10 <sup>-2</sup>	2,30 / 9,00
661,66	<sup>137</sup> Cs	6	1,53 10 <sup>-2</sup>	1,76 10 <sup>-2</sup>	2,30 / 9,00
1173,2	<sup>60</sup> Co	6	1,04 10 <sup>-2</sup>	1,19 10 <sup>-2</sup>	2,30 / 9,00

Como se ve en los resultados presentados en la tabla 3.3, en el caso de la energía de 33,3 keV la configuración óptima se obtiene para un valor de *H2* igual a cero, lo que corresponde a una botella de las mismas dimensiones establecidas en el proceso de optimización presentado en la tabla 3.2. Este resultado confirma la consistencia de ambos algoritmos, ya que proporcionan la misma solución aunque partiendo de distintas hipótesis. En general, mayores energías gamma conducen a configuraciones con un mayor valor del parámetro *H2*, es decir: configuraciones con una fracción mayor del volumen de la muestra en la zona lateral del detector. Este resultado se debe a las características del detector utilizado, con una ventana de carbón epoxy y un espesor de la capa muerta en la superficie del detector muy delgadas. Así, por ejemplo, para una muestra que emite fotones de energía igual a 1173,2 keV, sólo el 28 % del volumen activo se encuentra situado encima del detector. En relación al aumento de la eficiencia de detección para la geometría optimizada respecto a un contenedor estándar de tipo *Marinelli* se han obtenido diferentes resultados según la energía estudiada, como se ve en la tabla 3.3. Para bajas energías (33,3 y 59,54 keV) se ha mejorado la eficiencia en

torno a un 5,5 %. Para una energía en el rango intermedio (122 keV) el aumento de la eficiencia ha sido de un 8 %. Por encima de 365 keV se han obtenido mejoras en torno al 15 %. El resultado no se puede extrapolar a detectores de Germanio con características diferentes.

En la figura 3.10 se han representado las configuraciones óptimas para energías gamma de 33,3 keV y 1173,2 keV



**Figura 3. 10. Resultados de la optimización del contenedor de tipo Marinelli utilizando el algoritmo de simplex. a) Para  $E= 33,3$  keV, la solución óptima corresponde a una botella cilíndrica ( $H_2=0$ ). Esta solución es consistente con la optimización del sistema de medida unidimensional. b) Para  $E=1173,2$  keV, el contenedor optimizado contiene una fracción importante de su volumen situado en los lados del detector. Las figuras se han generado con el programa GVIEW incluido en el código PENELOPE.**

El procedimiento seguido hasta aquí ha permitido obtener la configuración de medida óptima para una energía dada. Sin embargo, no se ha estudiado la geometría óptima cuando se quiere medir una fuente que emite fotones de diferentes energías. Cuando el objetivo es la optimización del sistema de medida total se deben seguir otras aproximaciones. En todo caso hay otros factores, como las probabilidades de emisión gamma, que desempeñan un papel importante cuando se diseña el sistema de medida y la función optimizada puede ajustarse según las necesidades del usuario. Así, por

ejemplo, una formulación posible para optimizar la eficiencia de un conjunto de nucleidos,  $\varepsilon_{optimal}$ , puede ser:

$$\varepsilon_{optimal} = \sum_k \left[ \frac{\varepsilon_k}{p_{\gamma k}} \right]$$

Donde la suma se extiende a los  $k$  fotones gamma que se quieren estudiar y  $p_{\gamma k}$  son sus correspondientes probabilidades de emisión. Esta expresión utiliza las probabilidades de emisión gamma para pesar la eficiencia de recuento. Mediante el algoritmo de optimización simplex, ya explicado anteriormente, se ha encontrado la configuración óptima cuando se quieren medir los radionucleidos incluidos en la tabla 3.1. Para la elección del simplex inicial se trazó un triángulo que contenía los máximos de todas las energías consideradas y los vértices de ese triángulo se designaron como el “simplex inicial”. Las dimensiones, tanto de los vértices del simplex inicial como de la configuración óptima encontrada, se presenta en la tabla 3.4.

Como se esperaba, estos valores representan un compromiso entre la geometría óptima para medir fotones de baja energía y aquella para la medición de los de alta. La geometría óptima no es muy diferente a la de un Marinelli estándar y, por tanto, la mejora en la eficiencia es de solo un 2 %. Esta diferencia es significativamente inferior a la obtenida cuando se optimizaba la geometría para la medida de una sola energía; entonces se podía mejorar la eficiencia hasta un 15 %. En la figura 3.11 se ha representado la configuración óptima obtenida.

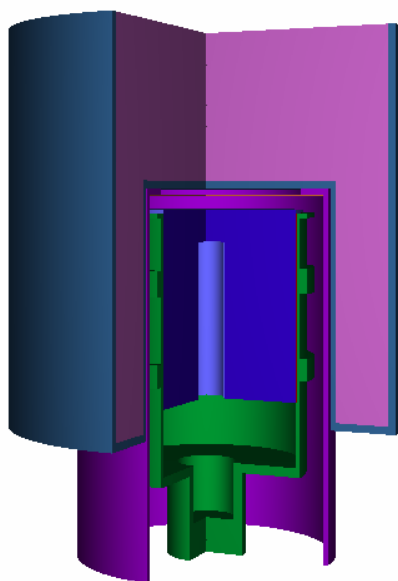
Se ha estudiado también la geometría óptima si las probabilidades de emisión no se considerasen en la estimación de la eficiencia total del sistema de medida ( $\varepsilon_{optima2}$ ):

$$\varepsilon_{optima2} = \sum_k [\varepsilon_k]$$

En este caso se obtendría una configuración óptima con los siguientes valores:  $H1=3,83$  cm,  $H2=8,53$  cm y  $R=6,25$  cm. Esto demuestra que la elección de un criterio particular de optimización afecta considerablemente a la forma del contenedor.

**Tabla 3. 4.-** Parámetros que definen los vértices del simplex inicial y los vértices óptimos en el proceso de optimización de las funciones de la eficiencia de detección  $\epsilon_{\text{optima1}}$  y  $\epsilon_{\text{optima2}}$ . Resultados de las funciones de la eficiencia  $\epsilon_{\text{optima1}}$  y  $\epsilon_{\text{optima2}}$  en los vértices considerados. Se presentan también los resultados para una geometría *Marinelli* estándar.

Vértice	H1	H2	R	$\epsilon_{\text{optima1}}$	$\epsilon_{\text{optima2}}$
V1	1,97	9,02	6,69	0,1599	0,111
V2	7,00	0,00	6,75	0,1560	0,095
V2	5,91	11,00	5,60	0,1863	0,123
V Optimo 1	5,17	7,40	6,05	0,1906	
V Optimo 2	3,83	8,53	6,25		0,129
<i>Marinelli</i> 1L estándar	6,26	7,50	5,80	0,1868	0,123

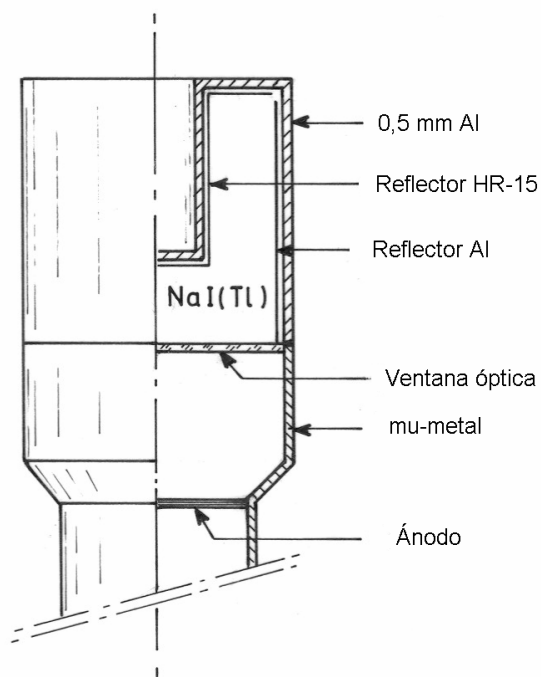


**Figura 3. 11.** Resultados de la optimización de un contenedor de tipo *Marinelli* para la medida de los radionucleidos presentados en la tabla 3.1 utilizando un algoritmo de simplex, y una función que use las probabilidades de emisión gamma para pesar las eficiencias de recuento de cada radionucleido.

## **4. MODELIZACIÓN DE DETECTORES DE NaI PARA SU ESTUDIO MEDIANTE EL MÉTODO $4\pi\gamma$ APLICACIÓN A LA CALIBRACIÓN DE NUCLEIDOS EMISORES DE POSITRONES**

### **4.1. DESCRIPCIÓN DEL MÉTODO $4\pi\gamma$**

La técnica de medida conocida como  $4\pi\gamma$  se propuso inicialmente como un método relativo de calibración de la actividad, pero en su formulación actual se considera absoluto. Se basa en el cálculo de la eficiencia de detección de un nucleido como una combinación de las probabilidades de detección de cada vía posible de desintegración, las cuales, a su vez, se obtienen por combinación de las eficiencias de detección de sus componentes individuales. La principal ventaja del método  $4\pi\gamma$  es que se puede aplicar a cualquier radionucleido emisor de fotones gamma, resultando especialmente apropiado para radionucleidos con esquemas de desintegración complejos que emitan un gran número de fotones en coincidencia [94-96]. En estos casos, la eficiencia puede ser muy cercana a la unidad y las incertidumbres de los parámetros del esquema de desintegración se compensan parcialmente, pudiendo así obtenerse resultados con incertidumbres muy pequeñas. Para una aplicación óptima, la geometría de la medida debe ser cercana a  $4\pi$  sr y la eficiencia intrínseca lo mas alta posible, por lo que el método se basa en la utilización de un detector de tipo “pozo” de NaI(Tl). La forma de construcción del detector garantiza una alta eficiencia geométrica, mientras que el uso de NaI permite alcanzar eficiencias intrínsecas mucho mayores que las de un detector semiconductor de tamaño comparable. En la figura 4.1 se presenta el esquema de un detector de este tipo:



**Figura 4. 1.- 12 Esquema de un detector de NaI(Tl) de tipo pozo.**

En su formulación original, las eficiencias de detección se obtenían a partir de la medida de fuentes radiactivas previamente calibradas, lo que convertía el método en relativo. En la formulación que se presenta en este trabajo, las eficiencias son evaluadas por medio de una simulación por Monte Carlo. Esta aproximación permite, además, la extensión del método a radionucleidos que se desintegran por emisión de positrones, para los cuales el cálculo detallado del espectro de emisión, y su seguimiento en el medio hasta la aniquilación, es esencial para obtener un resultado correcto. En este trabajo se presenta por primera vez (en la bibliografía) la extensión de este método a emisores de positrones, y se aplica a la medida de dos nucleidos de especial interés en el campo de la Medicina Nuclear:  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$ .

El proceso completo de cálculo de la eficiencia de detección para un nucleido determinado comprende los siguientes pasos:

- La identificación de todas las vías posibles de desintegración del nucleido, incluyendo las desexcitaciones subsiguientes. Típicamente, una vía incluye una
-

desintegración alfa o beta (en cualquiera de sus variantes) y una cascada de fotones de desexcitación.

- El cálculo de la probabilidad de cada una de las vías, teniendo en cuenta las probabilidades respectivas de sus componentes.
- El cálculo de la eficiencia de detección para cada vía. Se considera aquí la interacción de las distintas radiaciones con el detector y la combinación de las eficiencias de todas las vías con sus probabilidades respectivas para la obtención de la eficiencia total del nucleido estudiado.

La forma en que se realiza la última etapa permite dividir a este método en dos grandes grupos: 1) los que incluyen la simulación detallada del esquema completo, y 2) los que realizan el cálculo individual de la eficiencia de cada vía a partir de medidas o cálculos de la curva de eficiencia del detector.

Este método puede extenderse a la calibración de fuentes de radionucleidos cuyos descendientes tengan una actividad significativa, siempre que se conozca su estado de equilibrio radiactivo. Por otro lado, la aplicación a nucleidos que incluyan estados metaestables requiere modificaciones significativas tanto en el cálculo como en el dispositivo experimental [78].

#### **4.1.1. Simulación detallada**

En esta aproximación, el cálculo de la eficiencia de detección del detector se realiza mediante la simulación, completa o detallada, del proceso de desintegración del nucleido objeto de la medida [30]. Este formalismo de cálculo ha sido desarrollado para tratar nucleidos que se desintegran siguiendo un esquema complejo. Se parte del conocimiento del esquema completo de decaimiento del radionucleido; la forma de desintegrarse este se considera una cadena de Markov, en la que cada estado se caracteriza por la energía del nivel. En cada ramificación, el viaje a través de esta cadena está determinado con una probabilidad apropiada gobernada por los parámetros del esquema de desintegración.

El programa de simulación está concebido para tratar los sucesos uno a uno, con una rutina que genera la partícula en una posición determinada y con la probabilidad apropiada en función del estado de partida. En cada paso, mediante un código de



simulación Montecarlo, se calcula la energía depositada en el cristal por las partículas o fotones que forman el camino de desintegración. Con el cálculo de un número elevado de eventos se puede inferir tanto la eficiencia del detector como su respuesta.

Se supone que los fotones emitidos en una cascada no están correlacionados. Esta hipótesis es razonable para medidas realizadas en ángulos sólidos grandes porque, en estas circunstancias, se promedian y cancelan los efectos debidos a correlaciones angulares [97]. Por otra parte, si se conoce la función de correlación se puede insertar en el formalismo, o bien evaluar la máxima influencia comparando los cálculos con emisiones totalmente correlacionadas y los de emisiones con distribución angular totalmente aleatoria.

El esquema de desintegración puede describirse con todos los detalles necesarios. No obstante, si la deposición de energía en el detector para una rama determinada del esquema de decaimiento no es físicamente posible, o muy improbable, el camino correspondiente no debe ser incluido en la simulación con objeto de reducir tiempo de cálculo. Este fenómeno, por ejemplo, puede ocurrir cuando se emiten electrones Auger, fotones de baja energía, o radiación de frenado.

La ventaja de este método es que permite tratar fácilmente fuentes extensas eligiendo aleatoriamente la posición de los núcleos radiactivos en el volumen de la fuente. La atenuación y la dispersión en el material que conforma la fuente se cuantifican automáticamente. La desventaja de este método es que es necesario hacer un cálculo de Monte Carlo específico para cada radionucleido que se quiera estudiar. Por otro lado, para obtener resultados estadísticamente consistentes es preciso realizar la simulación de un gran número de historias y, al tratarse de sucesos con probabilidades muy dispares, el cálculo detallado de algunas de las vías puede requerir el uso de técnicas de reducción de varianza (ruleta rusa, *splitting*...) que son difíciles de implementar.

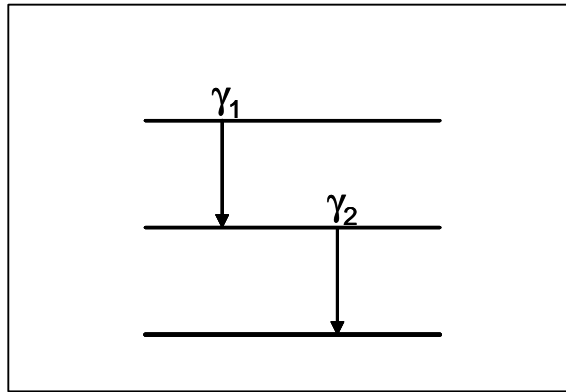
#### **4.1.2. Aproximación clásica**

La aproximación clásica consiste en calcular la eficiencia del detector para un radionucleido como una combinación de eficiencias de cada una de las energías gamma del esquema de desintegración del nucleido [94-96, 98]. La diferencia fundamental con

el método expuesto en el apartado anterior es que para el cálculo de la eficiencia total se parte de una serie de eficiencias que se conocen previamente, y pueden calcularse mediante un código de Monte Carlo o determinadas experimentalmente.

En la figura 4.2 se presenta un esquema muy sencillo, que corresponde a un radionucleido que se desintegra emitiendo dos fotones en cascada, considerados simultáneos desde el punto de vista de la detección. En este caso, la eficiencia de detección total,  $\varepsilon_t$ , se puede calcular en función de la eficiencia de detección de cada uno de los fotones gamma,  $\varepsilon_1$  y  $\varepsilon_2$ , según la expresión:

$$\varepsilon_t = \varepsilon_1 + \varepsilon_2 - \varepsilon_1 \cdot \varepsilon_2 = 1 - (1 - \varepsilon_1)(1 - \varepsilon_2)$$



**Figura 4. 2. Esquema de desintegración correspondiente a un radionucleido que se desintegra emitiendo dos fotones en cascada para ilustrar el cálculo de la eficiencia total en función de los procesos individuales.**

En la última parte de la ecuación anterior se expresa la eficiencia de detección total en función de las eficiencias de no-detección de las ramas individuales, lo que facilita su generalización a un caso complejo. Así, se tiene que para un radionucleido con  $n$  vías paralelas e independientes de desintegración, cada una de ellas con una probabilidad  $h_i$  y con  $k_i$  radiaciones coincidentes, la eficiencia de detección combinada se puede expresar en la forma:

$$\varepsilon_t = \sum_{i=1}^n h_i \left[ 1 - \prod_{j=1}^{k_i} (1 - \varepsilon_j) \right]$$


---

Cuando la vía de desintegración es alfa o beta, la probabilidad de detección correspondiente a estas partículas es, en general, despreciable salvo para partículas  $\beta$  de alta energía, y la expresión anterior es directamente aplicable: corresponde, entonces,  $h_i$  a las probabilidades de emisión alfa o beta respectivamente, multiplicadas por el producto de las probabilidades de desexcitación mediante las emisiones  $\gamma_j$  coincidentes, normalizadas a cada nivel.

$$h_i = P_{\alpha/\beta i} \prod_{j=1}^{k_i} P_j$$

Si la emisión beta es de alta energía, puede ser necesario considerar la radiación de frenado correspondiente cuya contribución se integra sin problemas en la expresión anterior.

Cuando la vía de desintegración es por captura electrónica, se generan rayos X en los procesos de reordenación atómica subsiguientes cuya contribución resulta, en general, significativa. En este caso,  $h_i$  corresponderá a las probabilidades de captura electrónica de los distintos niveles,  $P_{eci}$ . La eficiencia de detección de los rayos XK producidos tras la captura vendrá dada por:

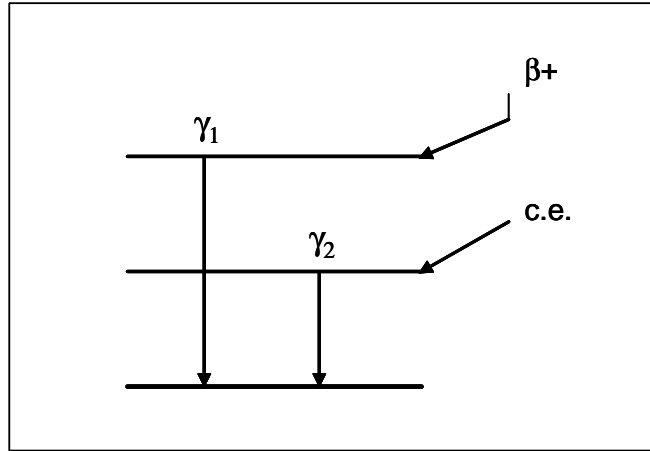
$$\varepsilon_{xc} = P_k \cdot \omega_k \cdot \varepsilon_{xk}$$

Donde  $P_k$  es la probabilidad de captura electrónica de la capa K,  $\omega_k$  es el rendimiento de fluorescencia para esta y  $\varepsilon_{xk}$  es la eficiencia de detección de un rayo XK.

La eficiencia total se expresa entonces como:

$$\varepsilon_t = \sum_{i=1}^n P_{eci} \prod_{j=1}^{k_i} P_j \left[ 1 - (1 - \varepsilon_{xc}) \cdot \prod_{j=1}^{k_i} (1 - \varepsilon_j) \right]$$

En esta ecuación se supone que sólo se detecta radiación XK, es decir, no se detecta radiación X proveniente de reordenaciones atómicas de vacantes de capas más altas. La extensión a la detección de radiación XL, que rara vez es significativa, resulta inmediata.



**Figura 4. 3.** Esquema de desintegración correspondiente a un radionucleido que se desintegra por emisión de un  $\beta^+$  y captura electrónica, realizado para ilustrar el cálculo de la eficiencia total.

Para emisores  $\beta^+$  se requiere un cálculo independiente que estime la eficiencia de detección de la emisión del positrón. Por ejemplo, para un radionucleido que se desintegra con la emisión de una partícula  $\beta^+$  y por captura electrónica, de acuerdo con el esquema de la figura 4.3, la eficiencia total de detección vendrá dada por:

$$\varepsilon_t = P_{\beta^+} \cdot (1 - \varepsilon_{\beta^+})(1 - \varepsilon_{\gamma_1}) + P_{ec} \cdot (1 - \varepsilon_{xc})(1 - \varepsilon_{\gamma_2})$$

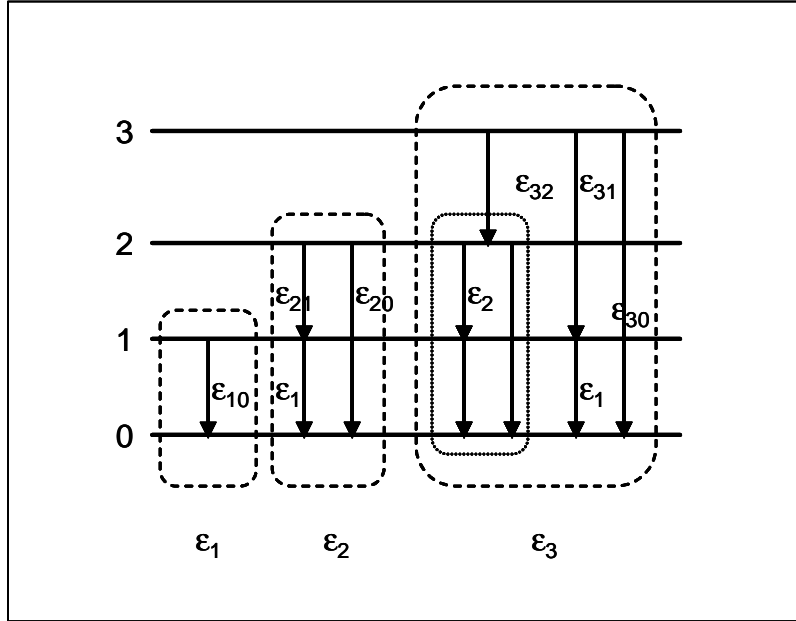
Cuando una transición gamma está convertida total o parcialmente, también hay que considerar en la eficiencia total de la transición la contribución de la parte que corresponde a la emisión de rayos X. Una forma posible de hacerlo es incluirla en la eficiencia de la transición gamma según la expresión:

$$\varepsilon_{\gamma} = \frac{1}{1 + \alpha_T} \cdot \varepsilon_{\gamma} + \frac{\omega_k \cdot \alpha_k}{1 + \alpha_T} \cdot \varepsilon_{xk}$$

donde  $\alpha_T$  y  $\alpha_k$  son el coeficiente de conversión total y el coeficiente de conversión para la capa K, respectivamente.

El cálculo de estas expresiones puede abreviarse mediante la utilización del concepto de eficiencia de nivel [94] en lugar de la división del esquema de desintegración en caminos o vías paralelas. En este caso, la eficiencia para el nivel i-

ésimo, es decir  $\varepsilon_i$ , se define como la eficiencia que corresponde a todas las transiciones, o a las transiciones encadenadas, que comienzan en el nivel  $i$ , siendo  $g_{ij}$  la probabilidad relativa de la transición electromagnética. La figura 4.4 ilustra este concepto, cuya idea básica se expone a continuación.



**Figura 4. 4. Síntesis del concepto eficiencia de nivel  $\varepsilon_i$  a partir de la eficiencia de las transiciones individuales  $\varepsilon_{ij}$ .**

Se comienza por el nivel de energía cero, cuyo valor será:

$$\varepsilon_0=0$$

la eficiencia del primer estado excitado será:

$$\varepsilon_1=\varepsilon_{10}$$

Para el nivel  $i$ -ésimo, la eficiencia se expresa entonces como:

$$\varepsilon_i = \sum_{j=0}^{i-1} g_{ij} SC(\varepsilon_{ij}, \varepsilon_j) / \sum_{j=0}^{i-1} g_{ij}$$

Expresión en la que la notación  $SC$  se refiere a la función suma en coincidencia ya vista anteriormente:

$$SC(e_1, e_2) = e_1 + e_2 - e_1 \cdot e_2$$

Los datos necesarios para el cálculo de la eficiencia a partir de las expresiones desarrolladas en las ecuaciones anteriores son los parámetros del diagrama de desintegración y la curva de eficiencia, en función de la energía para un fotón monoenergético. Esta última se puede obtener por cualquiera de los siguientes modos:

- Por simulación mediante el método de Monte Carlo, cuando se conocen las dimensiones exactas del detector y la geometría y materiales que lo componen, así como la composición y dimensiones de la fuente radiactiva. En este caso, el método de calibración puede considerarse absoluto. En general, los parámetros de construcción de los detectores de NaI se conocen con mucho detalle, por lo que se prefiere utilizar estos detectores a los de semiconductor, cuya caracterización es generalmente imposible con el nivel de detalle necesario.
- Por medida directa de los valores de eficiencia a partir de fuentes monoenergéticas cuya actividad se conoce. Los valores de la eficiencia de detección para energías intermedias se obtienen aplicando métodos de interpolación. En este caso, el método de medida es relativo.
- Por cálculo, analítico o numérico, de las expresiones integrales que indican la probabilidad de interacción, en función de los materiales y dimensiones de la fuente y el detector y las secciones eficaces correspondientes. En general, es un método menos preciso que la simulación de Monte Carlo.

En este trabajo se ha seguido el procedimiento clásico para la obtención de la eficiencia total del detector para un radionucleido, y la curva de eficiencia en función de la energía se ha obtenido por medio de simulaciones de Monte Carlo con el código PENELOPE.

## **4.2. SIMULACIÓN POR MONTE CARLO**

### **4.2.1. Modelo detallado del detector**

El detector con el que se realizaron las medidas experimentales es un detector de NaI(Tl) de tipo pozo de 7,6 x 7,6 cm, modelo 12SW12/W4 de HARSHAW con un diámetro de pozo de 2,54 cm y una profundidad de 5,2 cm, de alta eficiencia para fotones con energías en el rango de 15 keV a varios MeV. La figura 4.1 presenta un esquema de un detector de este tipo, indicando la composición y dimensiones de sus

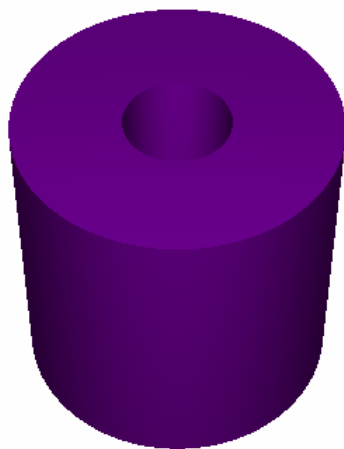
---

componentes principales. La carcasa es de aluminio con un espesor de 0,5 mm. Tiene dos reflectores: uno, situado en el interior del pozo, de HR15 (Óxido de magnesio) y de espesor 0,1 mm; el otro rodea al cristal por su parte externa y es de óxido de aluminio. La elección de un detector de tipo pozo garantiza una eficiencia geométrica muy alta. En la tabla 4.1 se presentan las principales dimensiones y materiales que forman el detector, así como el identificador numérico utilizado para la simulación con el programa PENCYL. Se incluye también el material que soporta la fuente radiactiva y que es parte del modelo simulado.

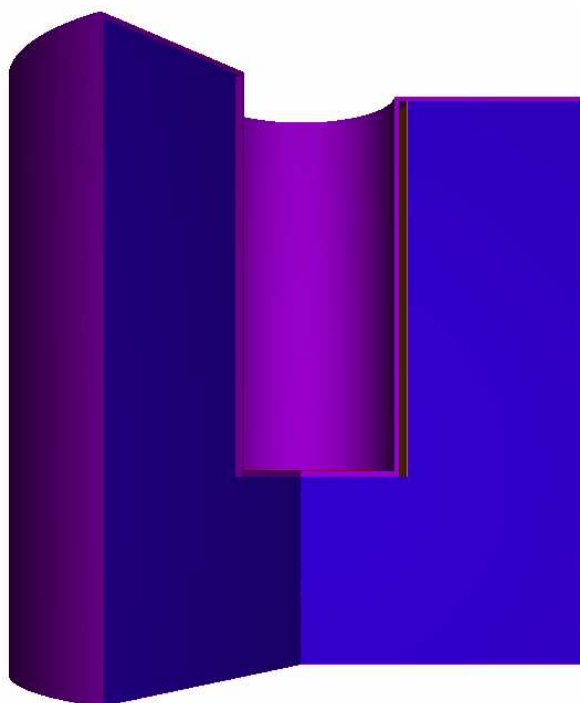
**Tabla 4. 1.- Materiales y dimensiones característicos del detector utilizado en las medidas**

<b>Cuerpo</b>	<b>Material</b>	<b>Identificador del Material</b>	<b>Dimensiones</b>
<b>Cristal detector</b>	NaI(Tl)	3	Cristal: 7,62 cm Diámetro 7,62 cm Altura Pozo: 2,86 cm Diámetro 5,08 cm Profundidad
<b>Carcasa</b>	Aluminio	1	0,5 mm
<b>Reflector (Pozo)</b>	Oxido de Magnesio (HR- 15)	2	0,1 mm
<b>Reflector externo</b>	Oxido de aluminio $Al_2O_3$	4	0,1 mm
<b>Fuente</b>	Polietileno	5	2 cm Diámetro 200 $\mu$ m Altura
<b>Medio</b>	Aire	6	

Las figuras 4.5 y 4.6 muestran un esquema general del modelo del detector y un detalle del mismo en la zona del pozo, respectivamente. En este esquema se pueden apreciar las diferentes partes geométricas del modelo de detector empleadas en la simulación: la fuente, la carcasa de aluminio y el reflector de óxido de magnesio. Las figuras han sido realizadas con la aplicación GVIEW ya mencionada.



**Figura 4. 5. Modelo detallado del detector de pozo de NaI(Tl), usado en los cálculos para determinar la eficiencia de detección con el código de simulación Monte Carlo PENELOPE**



**Figura 4. 6. Detalle del modelo de detector en la zona correspondiente al fondo del pozo sobre el que se sitúa la fuente radiactiva.**



La magnitud física que interesa calcular es la energía depositada en el detector tras una desintegración en la fuente radiactiva,  $E_0$ . Esta energía se presenta en forma de histograma, en el cual las clases tienen una anchura que se procura hacer corresponder con los canales del espectro experimental.

Para calcular la eficiencia total se suma la energía depositada en el cristal en todos los intervalos de energía del histograma y se multiplica por la anchura del intervalo de energía.

Hay que hacer notar que en la simulación del detector no se ha modelado la relación entre la energía depositada y la luz producida, que se caracteriza por una marcada alinealidad [46]. Estos efectos no lineales son importantes en estudios de espectrometría, pero pueden evitarse en el cálculo de la eficiencia total del detector.

Por otra parte, no se ha simulado la cadena electrónica del sistema de medida. Para poder comparar la energía depositada en el detector con el espectro experimental, se necesita convolucionar el espectro simulado con una función que describa el ensanchamiento de las líneas gamma debido a ese efecto. La forma experimental de un pico correspondiente a la absorción total de la energía de un fotón gamma se ha tratado abundantemente en la literatura especializada [3]. Para un detector de NaI, se puede suponer, en primera aproximación, que la distribución de energía se puede aproximar a una curva gaussiana:

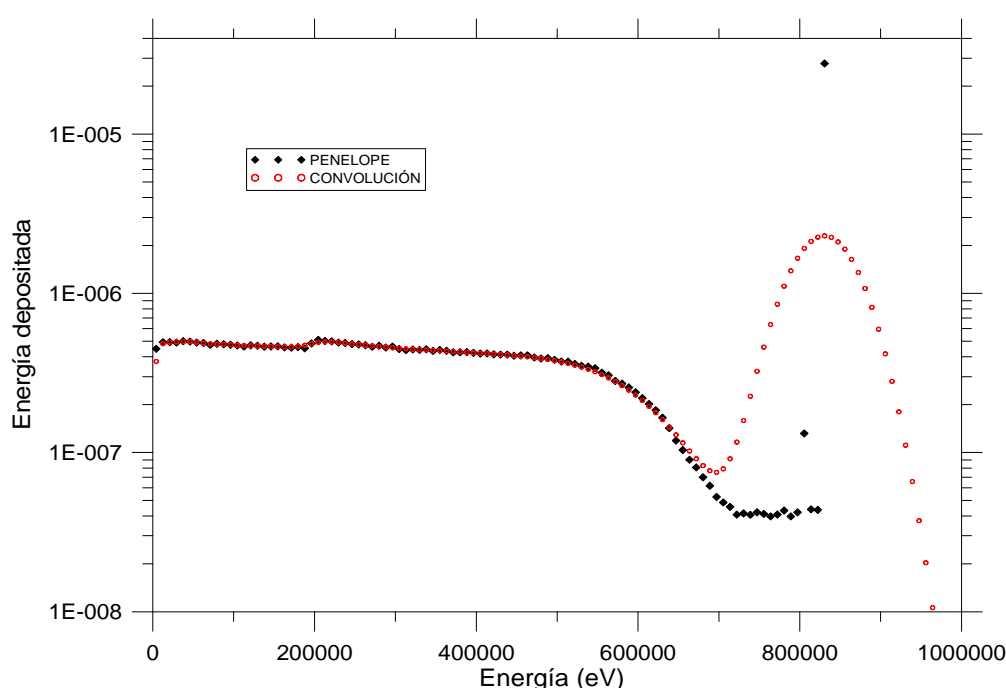
$$f(E) = h_0 e^{-(E-E_0)^2 / (2 \cdot s^2)}$$

Experimentalmente se observa que el parámetro de anchura  $s$  es una función de la energía que puede aproximarse por una expresión del tipo:

$$s = \frac{FWHM(E_0)}{2,355} = a_0 + a_1 \cdot E_0 + a_2 \cdot E_0^2$$

La resolución en energía, o anchura del pico a mitad de altura,  $FWHM$  en sus siglas en inglés, se obtiene experimentalmente midiendo con diversos radionucleidos que emiten fotones de distintas energías. Las constantes  $a_i$  se obtienen ajustando, mediante un procedimiento de mínimos cuadrados, la expresión anterior al valor experimental de  $FWHM$ .

Para obtener el espectro calculado se convoluciona el histograma de deposición de energía con la gaussiana anterior, cuya desviación estándar característica se puede obtener según la ecuación ya indicada. En la figura 4.7 se presenta el histograma de deposición de energía, obtenido en la simulación para un fotón de 835 keV y el espectro convolucionado con la función de respuesta del sistema.



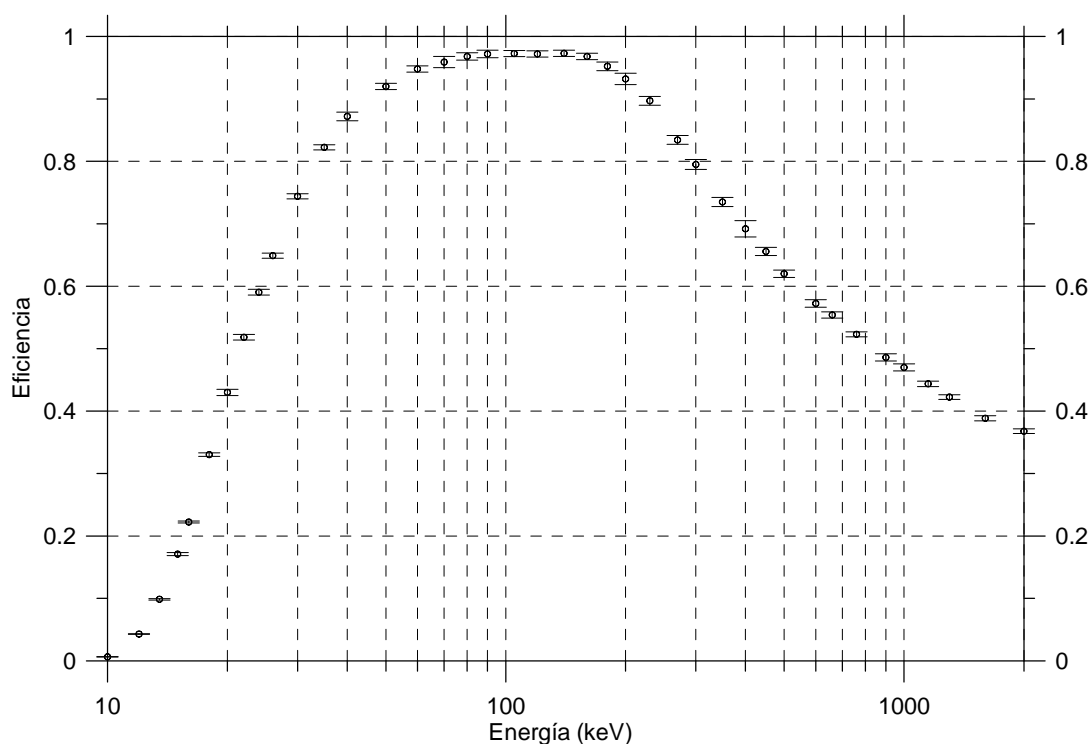
**Figura 4. 7. Distribución de la energía depositada en el cristal de NaI(Tl). Se presenta el resultado del cálculo con el código PENELOPE y el espectro convolucionado con una Gaussiana.**

#### **4.2.2. Obtención de la curva de eficiencia total del detector para emisores monoenergéticos**

Para caracterizar la respuesta del detector en términos de eficiencia frente a la energía, se realizaron una serie de simulaciones cuyos resultados se presentan en la figura 4.8. La curva muestra los valores obtenidos para la eficiencia de detección en energías comprendidas entre 10 y 2000 keV. Se observa que en el rango entre 70 y 200 keV, aproximadamente, la eficiencia es próxima a la unidad. A partir de esta

---

distribución discreta, en la que se dispone de valores de eficiencia para unas energías determinadas, resulta posible obtener la eficiencia para cualquier valor intermedio de la energía empleando alguna técnica de interpolación como, por ejemplo, *splines*.



**Figura 4. 8. Valores obtenidos por simulación para la eficiencia de detección en función de la energía de los fotones gamma para el detector de pozo de NaI.**

## 4.3. RESULTADOS

### 4.3.1. Dispositivo experimental

#### 4.3.1.1 Preparación de Muestras

Para las medidas se seleccionaron dos nucleidos de especial interés en el campo de la medicina nuclear:  $^{22}\text{Na}$ , utilizado para el control de calidad de los equipos, y  $^{18}\text{F}$ , un nucleido básico en los estudios conocidos como PET (Tomografía por emisión de positrones).

El procedimiento seguido para la calibración de las disoluciones de los dos radionucleidos fue el siguiente:

- Preparación de fuentes puntuales con alícuotas de la disolución.
- Calibración en actividad de las fuentes.
- Cálculo de la concentración de actividad de la disolución original.

El procedimiento de preparación de fuentes puntuales incluye la caracterización gravimétrica de una serie de alícuotas de la disolución de partida. Esto se realiza pesando un picnómetro que contiene la disolución radiactiva con una balanza microanalítica (Mettler MX-5: alcance máximo 5 g con una incertidumbre máxima de 8  $\mu\text{g}$  para masas inferiores a 3 g), y depositando una o varias gotas sobre una película de papel plástico de polietileno termosellable con un espesor de 75  $\mu\text{m}$ . Se deja secar la muestra hasta que la inspección visual indique que está seca. Después se cubre con una película similar y se sella el conjunto térmicamente. Se corta un disco circular que rodee a la fuente, centrado en ella, con las dimensiones adecuadas para su introducción en el pozo. Como norma general, se procura que la masa depositada esté entre 8 y 20 mg, aunque puede excederse este límite cuando la concentración de actividad de la disolución radiactiva lo requiera. El área activa, que se comprueba por medio de autorradiografías tiene aproximadamente 2 mm de diámetro.

En todas las medidas la fuente radiactiva se situó en el fondo del pozo y centrada en éste. Para estudiar con más detalle los procesos de aniquilación de los positrones, se realizaron medidas adicionales cubriendo la fuente radiactiva, en sus partes superior e inferior, con discos de aluminio de 1 mm de espesor y radio de 20 mm.

#### 4.3.1.2 Equipo de medida

Además del detector y la fuente de alta tensión, el equipo de medida consta de los siguientes elementos:

- Preamplificador sensible a carga modelo 113 de ORTEC.
  - Amplificador de espectroscopía modelo 2020 de CANBERRA.
  - Convertidor analógico digital modelo 7423/UHS de SILENA. Es un convertidor rápido que funciona por el método de aproximaciones sucesivas, lo que hace que el tiempo de análisis de cada impulso sea prácticamente independiente de la amplitud de la señal. El tiempo de conversión es de 3  $\mu\text{s}$ . La no linealidad
-

integral es menor de 0,02% para el 99,8% del rango total y la no linealidad diferencial es menor de 0,15 % sobre el 99,8 del rango total medido con la distribución Compton del  $^{60}\text{Co}$ .

- *Software* emulador de analizador multicanal EMCA-2000 de SILENA.
- Además se cuenta con dos generadores de impulsos: uno, modelo 814 FP de CANBERRA con una tasa de repetición variable (hasta 2 kHz); el otro, modelo TC 813 de TENNELEC con una tasa de repetición fija de 50 Hz (la frecuencia de la red eléctrica). Estos módulos se utilizan para el cálculo de la corrección por tiempo muerto. El método utilizado consiste en calcular la relación entre los impulsos recogidos provenientes del generador a la salida de la cadena electrónica, cuando el sistema se configura con y sin fuente radiactiva.

#### 4.3.2. Estudio experimental: cálculos y medidas

##### 4.3.2.1 Estudio del nucleido $^{22}\text{Na}$

###### Cálculo de la eficiencia de detección:

La aplicación directa del método tal y como se describió en el apartado anterior, resulta inviable en este caso, porque el recorrido de los positrones en el interior de la muestra y fuera de ella hace que sea imposible considerar ésta como una fuente puntual desde el punto de vista de emisión de los fotones de 511 keV. Por lo tanto, será preciso combinar la emisión de fotones de 1,2 Mev, cuyo origen puede restringirse al área activa de la fuente, con la emisión de los fotones de aniquilación cuya distribución espacial formará parte de la propia simulación.

La eficiencia total de detección para el  $^{22}\text{Na}$  se puede expresar como la combinación lineal de las eficiencias de detección de este mismo radionucleido para las partículas beta y la radiación gamma. El cálculo se basa en la formula explicada en el apartado 3.1.

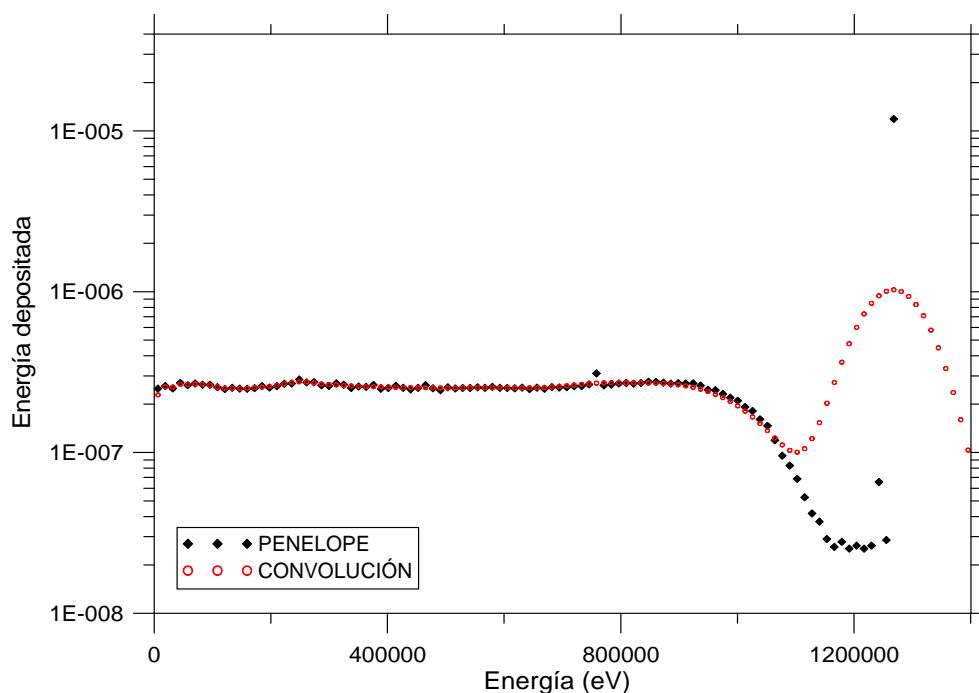
$$\varepsilon_t = \frac{P_c \cdot \varepsilon_\gamma + P_\beta \cdot (\varepsilon_\gamma + \varepsilon_\beta - \varepsilon_\gamma \cdot \varepsilon_\beta)}{P_c + P_\beta}$$

En esta expresión,  $\varepsilon_\gamma$  corresponde a la eficiencia del fotón de 1274,6 keV y  $\varepsilon_\beta$  a la de los positrones. El cálculo para los fotones de 1,2 Mev se realiza en la forma

---

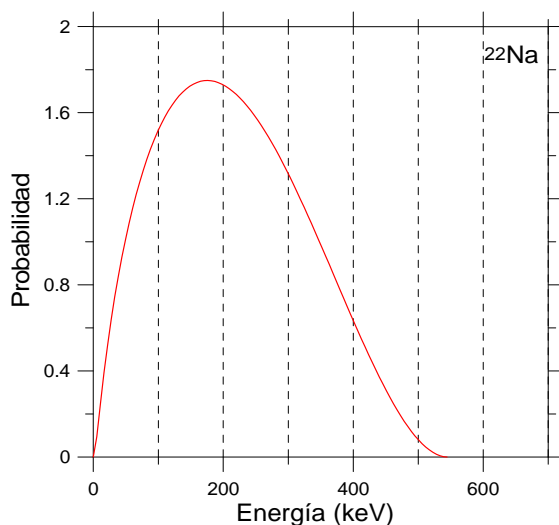
convencional, mientras que el correspondiente a los positrones se lleva a cabo utilizando como entrada el espectro beta de energía de  $^{22}\text{Na}$ .

El histograma de depósito de energía que corresponde a la interacción de los fotones gamma de 1274 keV en el cristal de NaI(Tl) se presenta en la figura 4.9, en la que se aprecia claramente la contribución del pico de absorción total a esta energía, así como la distribución debida a las interacciones Compton. Se muestra también el espectro convolucionado con la función que representa la respuesta del sistema, representada por una curva gaussiana cuyo ancho depende de la energía. Como consecuencia de la convolución, el pico de absorción total y el valle entre él y la distribución Compton adoptan un aspecto mucho más semejante al de un espectro real.



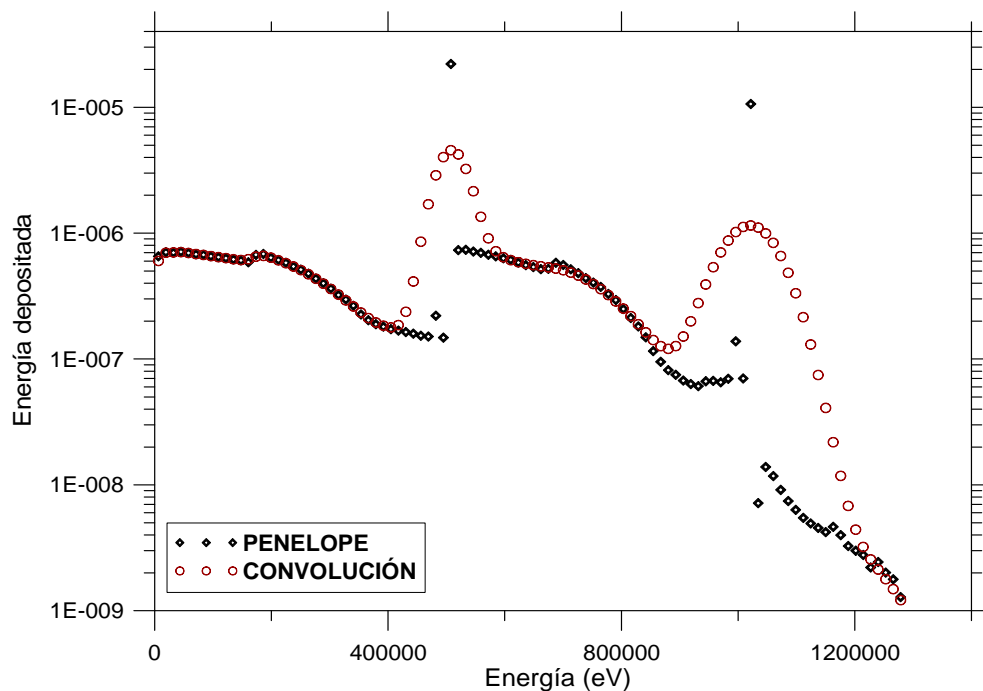
**Figura 4. 9. Espectro de energía depositada en el detector para los fotones gamma de energía 1274,6 keV. Histograma obtenido en el cálculo con el código PENELOPE y espectro convolucionado con una gaussiana.**

Para el cálculo del depósito de energía de los positrones, se hizo uso de la posibilidad que presenta el programa PENCYL de definir el espectro de emisión de la fuente radiactiva. Para ello, se generó la distribución numérica del espectro de Fermi de  $^{22}\text{Na}$  mediante el programa EFFY [61, 99]. La figura 4.10 presenta dicho espectro.



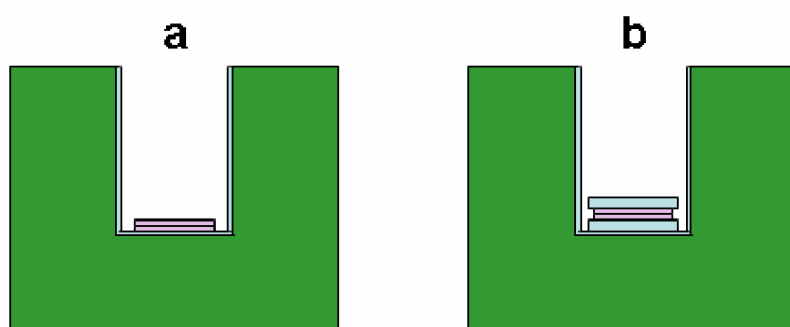
**Figura 4. 10. Distribución de Fermi para el espectro de energía de las partículas  $\beta^+$  emitidas en la desintegración del radionucleido  $^{22}\text{Na}$ , utilizado como dato de entrada en la simulación.**

El resultado de la simulación, en forma de histograma de la energía depositada por las partículas  $\beta$  emitidas, aparece en la figura 4.11, en la que se identifican claramente las estructuras debidas a la detección de un solo fotón de aniquilación (511 keV) y la detección simultánea de los dos fotones (1022 keV).



**Figura 4. 11. Espectro de energía depositada en el detector para la desintegración  $\beta^+$ . El histograma obtenido se ha convolucionado con una gaussiana que representa la respuesta del detector.**

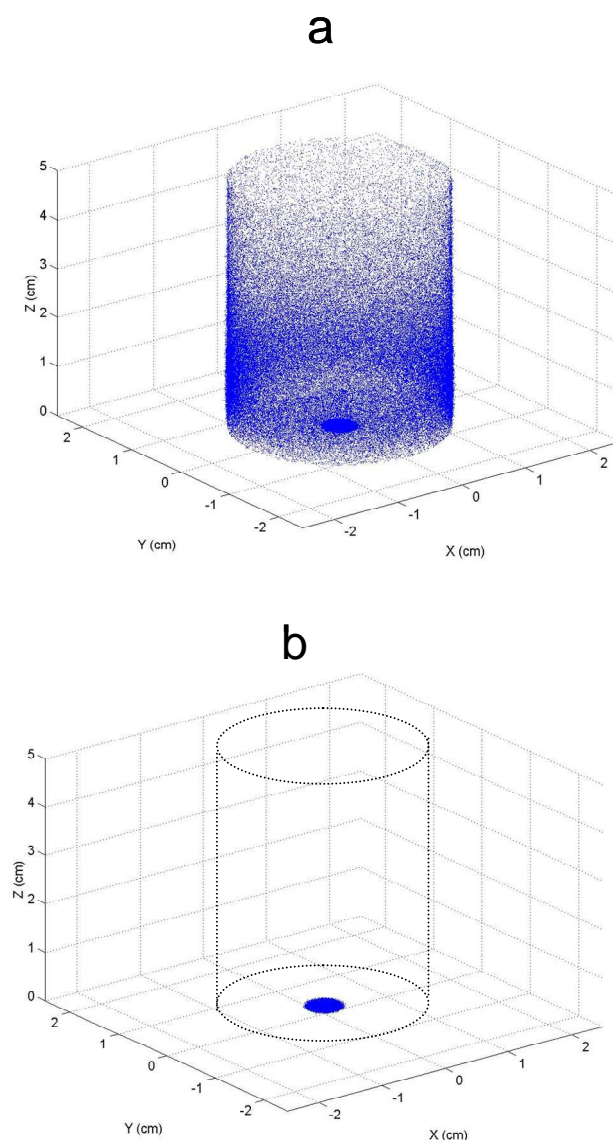
Como se comentó anteriormente, un problema potencial se debe a que la aniquilación del positrón y la emisión de fotones de energía igual a 511 keV no se producen en el mismo punto en el que se origina la desintegración y la emisión de los fotones de 1274,6 keV. Para caracterizar en detalle el proceso se estudió también una configuración experimental, en la cual la fuente se situó entre dos placas de aluminio de 1 mm de espesor. Estas configuraciones, representadas en la figura 4.12 se denominarán en adelante: Geometría a (fuente sin cubrir situada en el fondo del pozo) y Geometría b (fuente situada entre dos placas de Al en el fondo del pozo).



**Figura 4. 12. Configuraciones experimentales estudiadas para el estudio de la emisión de los fotones de aniquilación de una fuente emisora de positrones:**  
**Geometría a (fuente sin cubrir situada en el fondo del pozo) y Geometría b (fuente situada entre dos placas de Al en el fondo del pozo).**

En las figuras 4.13a y 3.13b se ha representado la distribución espacial de los puntos de emisión de los fotones de aniquilación para las dos configuraciones estudiadas. Para la Geometría a, que corresponde a las fuentes sin cubrir, la mayor parte de los positrones se aniquila en el propio soporte de la fuente o en la pared interior del pozo del detector.





**Figura 4. 13. Distribución espacial, obtenida por simulación de Montecarlo, de las posiciones en las que se ha producido la aniquilación de los positrones para una fuente de  $^{22}\text{Na}$ . a) Fuente sin cubrir en el interior del pozo. b) Fuente cubierta por dos discos de Al.**

La tabla 4.2 presenta la fracción de positrones que se aniquila en las diversas partes del detector. Se observa en ella que solamente un 2% de los positrones se aniquilan en el aire, mientras que el 54 % lo hace en la pared del detector; la fracción restante corresponde a la aniquilación en el polietileno que constituye el soporte de la fuente. Puede observarse que la fracción aniquilada en el polietileno es mayor en la configuración de fuente cubierta, lo que sin duda se debe a la retrodispersión en el Al.

---

La tabla 4.2 recoge las eficiencias de recuento correspondientes a la emisión de positrones, a la de fotones de desexcitación y a la combinada. Resulta interesante comparar el valor obtenido con el que correspondería a la emisión de dos fotones de 511 keV no correlacionados angularmente, seguidos de la emisión del fotón gamma de 1,27 MeV, que correspondería a la aplicación directa del método  $4\pi\gamma$  (suponiendo que los positrones se aniquilaran en el interior de la fuente y que la correlación angular entre los fotones de aniquilación fueran despreciable a efectos de cálculo de eficiencia). Los resultados numéricos confirman que hay una diferencia significativa debida a la distribución espacial presentada en la figura 4.13a. Para la geometría b, en la que la fuente se sitúa entre dos discos de aluminio, la distribución espacial, que se presenta en la figura 4.13b, indica que la casi totalidad de los positrones se aniquila o bien en el soporte, o bien en el disco de aluminio. Las proporciones se indican en la tabla 4.2, y muestran claramente que no existe una cantidad significativa de positrones que escapen del conjunto formado por la muestra y los discos de Al.

**Tabla 4. 2. Fracción de positrones aniquilados en las distintas partes del detector para los dos nucleidos estudiados.**

<b>Nucleido</b>	<b><math>^{22}\text{Na}</math></b>	<b><math>^{18}\text{F}</math></b>
<i>Energía Máxima <math>\beta^+</math> (keV)</i>	545,6	633,5
Geometría (a) (%):		
Pared del detector	54,0	60,1
Polietileno	43,9	37,8
Aire	2,1	1,9
Geometría (b) (%):		
Pared del detector	0,0	0,0
Polietileno	48,4	42,6
Aire	0,0	0,0
Discos de Al	51,6	57,3

La eficiencia calculada, que se presenta en la tabla 4.3, es casi idéntica a la que se obtiene mediante el cálculo simplificado, como podría esperarse del hecho de que la fuente se comporta como una fuente confinada en una región espacial muy cercana a la delimitada por el polietileno.

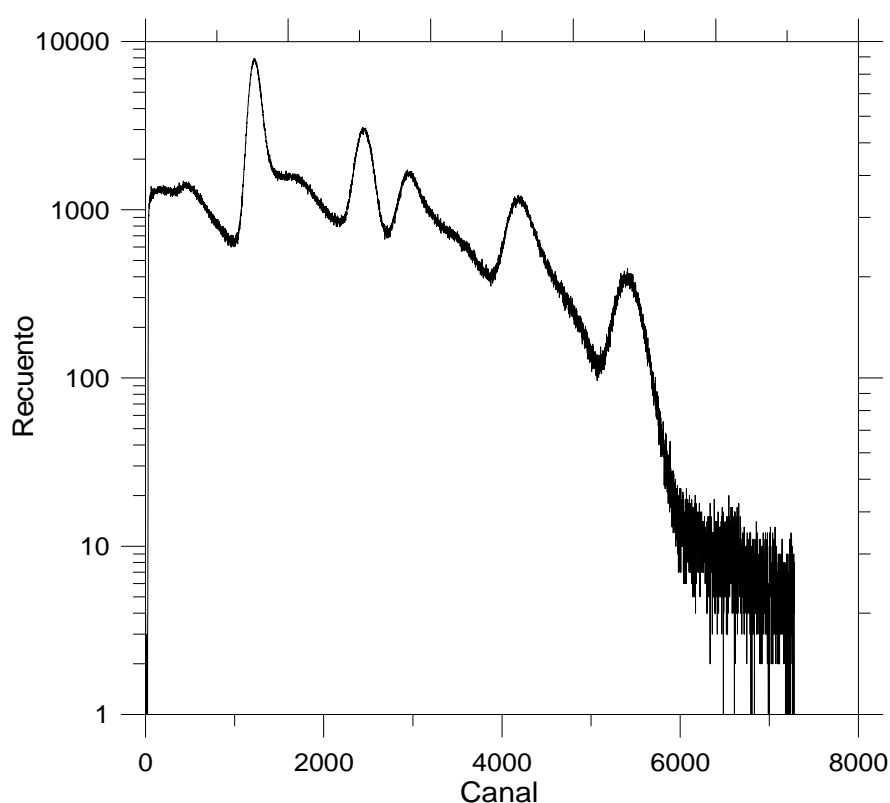
**Tabla 4. 3. Eficiencia calculada con el código Penélope para las geometrías de medida a y b correspondientes a fuentes sin cubrir y cubiertas respectivamente. Se presentan resultados separados para la emisión  $\gamma$  de 1275 keV, para positrones y para la eficiencia total. Se incluye también la eficiencia que correspondería a una fuente emisora de dos fotones de 511 keV seguidos de un fotón de 1275 keV.**

NUCLEIDO	EFICIENCIA	GEOMETRÍA (a)	GEOMETRÍA (b)	2 x 511 keV
<sup>22</sup> Na	$\beta^+$	0,8272 (32)	0,8543(34)	0,8503(46)
	$\gamma$ (1,27 MeV)	0,4301(18)	0,4272 (18)	0,4301 (18)
	Total	0,8539 (37)	0,8671 (38)	0,8657 (37)
<sup>18</sup> F	$\beta^+$	0,8236 (27)	0,8545 (28)	0,8503 (46)
	Total	0,7977 (29)	0,8277 (31)	0,8236 (47)

#### Calibración de la disolución activa

Para la calibración se prepararon 4 fuentes puntuales de masa conocida a partir de una disolución que se calibró también por el método de coincidencias  $4\pi\beta\text{--}\gamma$ . De la disolución se preparó una ampolla con el fin de enviarla para su medida al Sistema Internacional de Referencia mantenido por el BIPM. A partir de las actividades medidas y las masas de las fuentes, puede calcularse la concentración de actividad de la disolución de partida. En la tabla 4.4 se presentan las masas de las cuatro fuentes utilizadas en las experiencias, así como los resultados de su calibración.

Un espectro típico se presenta en la figura 4.14. En él se pueden identificar las siguientes estructuras: el pico de 511 keV, situado en el canal 1221; el de 1022 keV, situado en el canal 2448; el de 1275 keV, situado en el canal 2962; el de 1275+511 keV, situado en el canal 4203; y el de 1275+1022 keV, situado en el canal 5416.



**Figura 4. 14. Espectro de energías de una fuente de  $^{22}\text{Na}$  medida en un detector de pozo de NaI(Tl).**

La actividad A de las fuentes se calculó a partir de la expresión:

$$A = \frac{N}{t \cdot \epsilon_t} \cdot f_d \cdot f_{\Delta t} \cdot f_\tau$$

Donde N es el área total del espectro medido,  $f_d$  es el factor de corrección por decaimiento hasta la fecha de referencia de la medida,  $f_{\Delta t}$  es el factor de corrección por decaimiento durante la medida y, finalmente,  $f_\tau$  es el factor de corrección por tiempo muerto. No se aplicaron las correcciones por tiempo muerto y por decaimiento durante la medida por no contribuir significativamente al resultado.

Para calcular el área total de un espectro, se integró este, se descontó el fondo correspondiente al tiempo de la medida y se realizó la extrapolación a un valor de energía igual a cero. Para determinar el número de canales en que se realiza la extrapolación, se calcula el número de cuentas por canal en la zona plana del espectro próximo a la zona de energía cero promediando un número significativo de canales. Se

calibra en energía el espectro, utilizando los picos de energías 511 y 1022 keV, y se obtiene el número de canal que corresponde a una energía  $E=0$ .

Una vez conocidas las actividades se determinaron las concentraciones de actividad correspondientes, o actividades por unidad de masa activa dispensada. Este valor debe mantenerse constante, dentro de las incertidumbres experimentales, para todas las muestras y configuraciones de medida.

En la tabla 4.4 se presenta un resumen de los resultados obtenidos con las cuatro fuentes y las dos configuraciones de medida. De los resultados presentados cabe destacar la baja dispersión entre resultados obtenidos con distintas fuentes, menor del 0,16 %. Los valores obtenidos para las dos configuraciones consideradas son prácticamente idénticos.

**Tabla 4. 4. Valores obtenidos para la concentración de actividad de una disolución de  $^{22}\text{Na}$  en las dos geometrías de medida. Fecha de referencia para los cálculos: 1-03-06 a las 12:00.**

	GEOMETRÍA A				GEOMETRÍA B			
Fuente	2	3	4	5	2	3	4	5
Masa (mg)	9,1044	8,3865	11,4883	12,3294	9,1044	8,3865	11,4883	12,3294
Fecha	17-2-06	17-2-06	17-2-06	17-2-06	20-2-06	20-2-06	20-2-06	20-2-06
Hora de medida	16:30	15:35	15:55	16:20	9:40	9:53	10:07	10:18
Tiempo (s)	500	500	500	500	500	500	500	500
Área neta	383033	353698	483521	519426	389313	356842	490497	527565
Extrapolación	3758	3758	5251	5559	4315	3931	4551	6545
Área neta	387257	357456	488772	524985	393628	360773	495048	534110
Decaimiento	0,99142	0,99140	0,99141	0,99142	0,99339	0,99340	0,99340	0,99341
<b>Concentración de Actividad (Bq/mg)</b>	<b>98,78</b>	<b>98,98</b>	<b>98,80</b>	<b>98,88</b>	<b>99,07</b>	<b>98,57</b>	<b>98,74</b>	<b>99,24</b>
<b>FINAL</b>	<b>98,86</b>				<b>98,91</b>			
<b><math>\sigma</math></b>	<b>0,05</b>				<b>0,16</b>			

Las componentes principales de incertidumbre que afectan a los resultados presentados en la tabla 4.4, y que aparecen detallados en la tabla 4.5, son las siguientes: incertidumbre de la masa de la muestra, incertidumbre de recuento, incertidumbre debida a la extrapolación a energía igual a cero, incertidumbre del modelo de simulación, incertidumbre en el tiempo de recuento e incertidumbre asociada a los parámetros de desintegración.

- La incertidumbre de la masa de la muestra se estima que es del orden de un 0,1 %.
- La incertidumbre relativa de recuento debida a las fluctuaciones estadísticas se ha estimado como  $I/\sqrt{N}$ ,  $N$  es el área total medida.
- Para la evaluación de la incertidumbre en la extrapolación, en cada muestra se han realizado distintas extrapolaciones. Se estima su contribución como  $0,1 \times N_{ext} / N$ .
- Las componentes esenciales de incertidumbre asociadas a la simulación son las siguientes: a) incertidumbre debida a la estadística utilizada en la simulación, que puede reducirse simulando un número suficientemente alto de eventos para aumentar la estadística, y que en este caso ha sido del 0,42 %; b) incertidumbre debida a la definición de la geometría del detector, cuyo valor se ha estimado en un 0,02%; y c) contribución debida a la incertidumbre en los valores de las secciones eficaces, que se ha estimado en un 0,10 %.
- La incertidumbre debida al tiempo de medida se ha estimado en un 0,1 %.
- La incertidumbre en los parámetros de desintegración tiene dos componentes: la debida a la influencia que tienen en el cálculo de la eficiencia, y la influencia del período en el cálculo del decaimiento hasta la fecha de referencia. El procedimiento de evaluación es similar: se calcula la diferencia entre el valor con la mejor estimación y el valor calculado con la mejor estimación más la incertidumbre del parámetro. Así, la incertidumbre en el factor de corrección por decaimiento durante la medida es:

$$u(f_d) = f_d(T_{1/2} + u(T_{1/2})) - f_d(T_{1/2})$$

cuyo valor resulta ser muy pequeño (0,00025%).

- Por otro lado, la incertidumbre debida a los parámetros de desintegración que influyen en el cálculo de la eficiencia total se ha estimado en un 0,06 % tras aplicar la siguiente expresión:

$$u(\varepsilon_d) = \frac{(P_c + u(P_c)) \cdot \varepsilon_\gamma + (P_\beta - u(P_c)) \cdot (\varepsilon_\gamma + \varepsilon_\beta - \varepsilon_\gamma \varepsilon_\beta)}{P_c + P_\beta} - \frac{P_c \cdot \varepsilon_\gamma + P_\beta \cdot (\varepsilon_\gamma + \varepsilon_\beta - \varepsilon_\gamma \varepsilon_\beta)}{P_c + P_\beta}$$

La tabla 4.5 resume las contribuciones a la incertidumbre de la medida. El resultado final para la calibración de concentración de actividad de una fuente puntual con este método tiene una incertidumbre del 0,5 %. No se observan diferencias significativas entre las dos disposiciones fuente-detector consideradas.

**Tabla 4. 5. Incertidumbres de medida de la concentración de actividad para el  $^{22}\text{Na}$ .**

COMPONENTES DE LA INCERTIDUMBRE	u %
Masa de la muestra	0,10
Recuento	0,08
Extrapolación	0,11
Modelo	
Estadística	0,42
Geometría detector	0,05
Secciones eficaces	0,10
Tiempo de recuento	0,10
Parámetros de desintegración	
Periodo de semidesintegración	0,00
Eficiencia total	0,06
<b>Total</b>	<b>0,48</b>

#### Medida por coincidencias y comparación de resultados

Para la evaluación del método se ha procedido a comparar los resultados del cálculo de actividad con los obtenidos por el método de coincidencias  $4\pi\beta-\gamma$ .

Para el recuento en coincidencias se utilizó un equipo que incluye un contador proporcional presurizado a 0.5 MPa en la vía  $\beta$  y un detector de NaI(Tl) de 7,5x7,5 cm en la vía gamma. Se utilizaron dos métodos, cuya diferencia estriba en la elección de la ventana gamma. En el primero, se seleccionaron las coincidencias entre los impulsos  $\beta^+$  y los fotones de 1274 keV. La ventana gamma se centró en el pico de absorción total del

detector NaI(Tl). En el segundo método, se obtuvieron coincidencias entre los impulsos  $\beta^+$  y el pico suma de 1274+511 keV. Las energías de los rayos X y electrones Auger que siguen a la captura electrónica son de alrededor de 0.8 keV. Como el umbral de discriminación beta se situó en 3 keV, ninguna de ellas se detectó en el contador proporcional. Como consecuencia, los resultados de la calibración dependen directamente de la razón de ramificación de la emisión  $\beta^+$ .

Se prepararon cinco fuentes gravimétricamente sobre soportes formados por metalización de películas de VYNS. Los métodos de calibración utilizados han sido descritos previamente [100]. Se realizaron las correcciones habituales por tiempo muerto, fondo, coincidencias accidentales y decaimiento.

En el primer método, propuesto por Grigorescu, se obtiene la ecuación de coincidencias siguiente:

$$N_0 = (N_\beta * N_\gamma / N_c) * (0,991 / (1 + a_1 / a_2 \varepsilon_{\beta\gamma} + (1-k) * (a_2 * N_\gamma / N_c - 1)))$$

donde  $N_0$  es la actividad de la fuente;  $N_\beta$ ,  $N_\gamma$  y  $N_c$  son las tasas de recuento de los canales correspondientes corregidas por tiempo muerto, fondo, decaimiento y coincidencias accidentales;  $a_2$  y  $a_1$  son las probabilidades de emisión de la radiación  $\beta^+$  y la captura electrónica, respectivamente;  $\varepsilon_{\beta\gamma}$  es la eficiencia de detección gamma del contador beta; y  $k$  es un parámetro que se obtiene experimentalmente en el procedimiento de extrapolación.

En el segundo método [101], desarrollando las ecuaciones de coincidencia para el pico suma gamma, se obtiene:

$$N_0 = N_\beta * N_{\gamma 1,79} / (N_c * a)$$

Donde  $a=0.9$  es la probabilidad de emisión  $\beta^+$  y  $N_{\gamma 1,79}$  es la tasa de recuento debida al pico suma de 1.79 MeV.

El valor obtenido por esta técnica para la concentración de actividad se presenta en la tabla 4.6.

El estudio de la consistencia estadística de las incertidumbres asociadas a los valores estimados se ha realizado con la ayuda del denominado *Z-score*, definido como:



$$Z = \frac{|C_{4\pi\gamma} - C_{LMRI}|}{\sqrt{u_{4\pi\gamma}^2 + u_{LMRI}^2}}$$

Donde  $C_{4\pi\gamma}$  es el valor de la concentración de actividad estimado según el procedimiento presentado en este trabajo;  $u_{4\pi\gamma}$  es la incertidumbre asociada;  $C_{LMRI}$  es el valor de la concentración de actividad calibrada por el LMRI, que en este caso corresponde al método  $4\pi\beta-\gamma$ , y  $u_{LMRI}$  la incertidumbre asociada. En la tabla 4.6 se presentan los resultados de la comparación.

**Tabla 4. 6. Resultados de la medida de concentración de actividad de una disolución de  $^{22}\text{Na}$  por dos métodos distintos.**

Método	Concentración de actividad (Bq/mg)	U %	z-score
$4\pi\beta-\gamma$	98,88	0,5	0,014
$4\pi\gamma$	98,89	0,5	

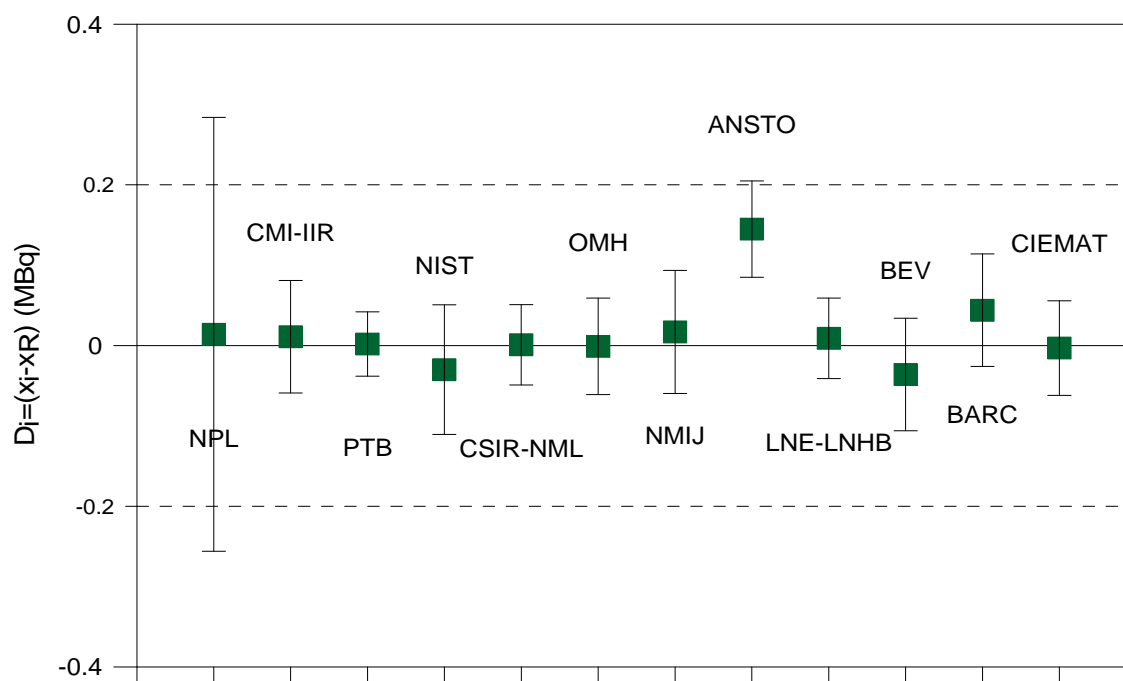
Existe una excelente concordancia entre ambos resultados si tenemos en cuenta sus incertidumbres respectivas. Con los datos obtenidos de esta calibración se preparó una ampolla de  $^{22}\text{Na}$  para su envío al BIPM, con el objetivo de participar en el sistema internacional de referencia para emisores gamma (SIR). Los distintos Laboratorios Nacionales de Metrología (NMI) han enviado un total de 29 ampollas de  $^{22}\text{Na}$  a la base de datos del SIR. En la tabla 4.7 se presentan los resultados de la medida de los diferentes laboratorios que han contribuido a establecer el valor clave de referencia para el  $^{22}\text{Na}$ . La Actividad está expresada en términos de Actividad Equivalente ( $A_e$ ) [102].

El valor de referencia de la comparación clave (KCRV) para  $^{22}\text{Na}$  es en la actualidad 7534 (7) kBq [102]. Por tanto, el CIEMAT, con un valor de Actividad Equivalente de 7523 (29) kBq, que corresponde a la media entre la actividad obtenida con el método  $4\pi\beta-\gamma$  y con el método  $4\pi\gamma$ , concuerda perfectamente con el KCRV si se consideran las incertidumbres experimentales.

**Tabla 4. 7. Actividad equivalente de  $^{22}\text{Na}$  en la comparación clave BIPM.RI(II)-K1.Na-22.**

<b>Laboratorio i</b>	<b><math>x_i</math> kBq</b>	<b><math>u_i</math> kBq</b>
NPL	7540	150
CMI-IIR	7537	34
PTB	7523	15
NIST	7496	40
NMIJ	7543	38
MKEH	7525	27
NMISA	7568	14
ANSTO	7671	21
LNE-LNHB	7535	18
BEV	7490	31
BARC	7579	29
CIEMAT	7523	29

En la figura 4.15 se presentan los resultados de los distintos laboratorios participantes en la intercomparación de  $^{22}\text{Na}$ , en términos grado de equivalencia, junto con la incertidumbre de la medida. El grado de equivalencia de una medida de un patrón dado, es el grado según el cual ese patrón es consistente con el valor de referencia de la comparación clave. Se expresa cuantitativamente en términos de la desviación respecto al KCRV y la incertidumbre expandida ( $k=2$ ).

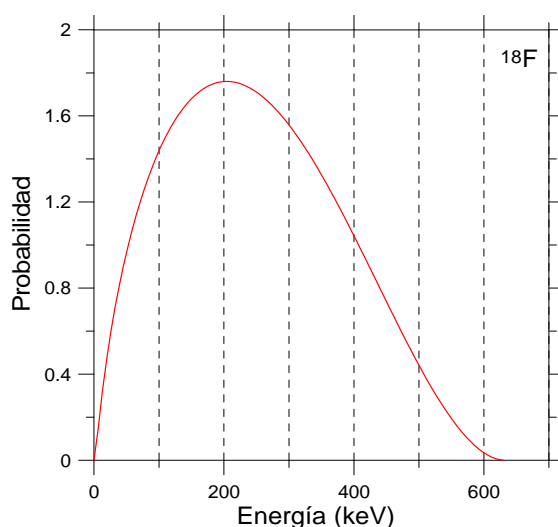


**Figura 4. 15.** Grado de equivalencia con el KCRV para la comparación BIPM.RI(II)-K1-Na-22.

#### 4.3.2.2 Estudio del nucleido $^{18}\text{F}$

##### Cálculo de la eficiencia de detección

El cálculo de la eficiencia se ha realizado de la misma manera que se describió en el apartado anterior. El espectro de emisión  $\beta^+$  utilizado como dato de entrada en la simulación se ha calculado con el programa EFFY [60, 99]. En la figura 4.16 se presenta el espectro de Fermi correspondiente.



**Figura 4. 16. Espectro de energía de las partículas  $\beta^+$  emitidas en la desintegración del radionucleido  $^{18}\text{F}$ .**

En este caso la eficiencia total de detección se limita a la de la desintegración  $\beta^+$ , multiplicado por su probabilidad de emisión. El examen de la tabla 4.2, que presenta la fracción de positrones aniquilados en las diversas partes del detector, indica que hay una mayor contribución en las paredes de este, lo que se debe a la mayor energía de los positrones emitidos por el  $^{18}\text{F}$ . Los resultados son similares a los ya presentados para  $^{22}\text{Na}$ ; aunque, debido a la mayor energía de los positrones, la fracción aniquilada fuera de la fuente es ligeramente mayor, en este caso, para la configuración de fuente desnuda.

Los valores de eficiencia de detección calculados muestran que ésta es mayor en el caso de la geometría b, es decir, cuando la fuente se sitúa entre placas de aluminio. Este resultado es similar al obtenido en el cálculo con el  $^{22}\text{Na}$ . Como en ese caso, la mayor eficiencia se debe a que la emisión de los fotones de aniquilación se produce en un espacio reducido y, por tanto, el ángulo sólido no cubierto por el detector es menor. Al no existir en este caso una emisión de fotones distinta a los fotones que se producen en la aniquilación, el efecto es mayor que en el caso del  $^{22}\text{Na}$ : 3,8 % frente al 1,5 %.

### Calibración de la disolución activa

La disolución original, preparada por la firma MOLYPHARMA en un volumen muy pequeño, se diluyó con el propósito de alcanzar una concentración de actividad tal que, al preparar fuentes puntuales de masa conocida para la calibración por el método  $4\pi\gamma$ , la tasa de recuento fuera lo suficientemente baja para que se pudiera calibrar sin presentar problemas de tiempo muerto. Una fracción de aproximadamente 4 mL se separó e introdujo en un vial del tipo penicilina para su medida por medio de otra técnica.

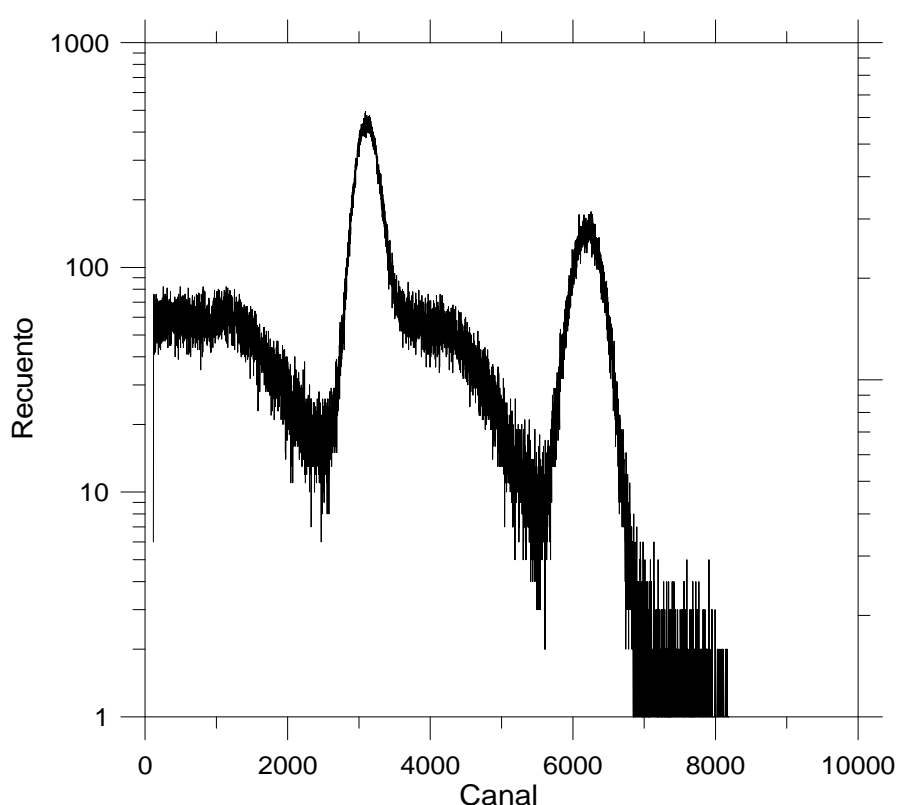
En la tabla 4.8 se presenta un resumen de los resultados obtenidos. Al igual que en el caso del  $^{22}\text{Na}$ , los cálculos se han realizado tanto para la fuente situada directamente sobre el detector como con la localizada entre placas de aluminio de 1 mm de espesor.

**Tabla 4. 8. Resultados de la medida de Actividad y Concentración de Actividad de cuatro fuentes de  $^{18}\text{F}$  en las dos geometrías estudiadas. La fecha de referencia para los cálculos es 24-04-06 a las 18:00.**

	GEOMETRÍA A				GEOMETRÍA B			
Fuente	2	3	4	5	2	3	4	5
Masa (mg)	6,3249	12,836	12,2092	12,5036	6,3249	12,836	12,2092	12,5036
Fecha	20-4-06	20-4-06	20-4-06	20-4-06	20-4-06	20-4-06	20-4-06	20-4-06
Hora medida	18:00	18:28	18:53	19:16	19:28	19:41	19:53	20:12
Tiempo (s)	500	500	500	200	200	200	200	200
Área neta	317224	542869	440057	157735	76334	142359	126609	114933
Extrapolación	2009	6401	4681	2502	1256	2566	1789	1093
Área total	319233	549270	444738	160239	77590	144925	128398	116026
Decai. Ref	1,00613	1,19348	1,40489	1,61622	1,74864	1,90331	2,04693	2,30626
Decai. Medida	1,02655	1,02655	1,02655	1,01056	1,01056	1,01056	1,01056	1,01056
Concentración de Actividad (Bq/mg)	130,70	131,44	131,71	131,19	130,95	131,19	131,41	130,64
FINAL	131,26				131,05			
σ	0,22				0,16			
Δ %	0,16							

En la figura 4.17 se presenta un espectro de  $^{18}\text{F}$  medido en el detector de pozo de NaI(Tl); en la tabla 4.7, los principales resultados que se obtuvieron en la medida de las fuentes. El procedimiento para el cálculo de la concentración de actividad fue similar al

utilizado en el caso de  $^{22}\text{Na}$ . Tras la calibración en actividad de las fuentes, se obtuvieron los valores correspondientes a la concentración de actividad de la disolución original. Hay que hacer notar que, debido al corto periodo del  $^{18}\text{F}$ , el factor de corrección por decaimiento durante la medida es significativo y ha sido incluido en la estimación de la actividad.



**Figura 4. 17.- Espectro de energía de una fuente de  $^{18}\text{F}$  medida en un detector de pozo de NaI(Tl).**

Como en el caso del  $^{22}\text{Na}$  se observa una baja dispersión en los resultados. Las comparaciones entre la actividad calculada con las dos geometrías consideradas originan una diferencia en la estimación de la concentración de actividad de 0,16 %. Por tanto ambas medidas son compatibles.

Respecto al cálculo de incertidumbres, además de las consideradas en el cálculo del  $^{22}\text{Na}$ , se estima la debida al decaimiento del radionucleido durante la duración de la medida. En la tabla 4.9 se presentan los resultados que obtendremos de la evaluación de incertidumbres. Los valores son comparables a los encontrados en la calibración de  $^{22}\text{Na}$ .

---

**Tabla 4. 9.- Incertidumbres de medida de la concentración de actividad para el  $^{18}\text{F}$ .**

COMPONENTES DE LA INCERTIDUMBRE	u %
Masa de la muestra	0,10
Recuento	0,08
Extrapolación	0,06
Modelo	
Estadística	0,30
Geometría detector	0,16
Secciones eficaces	0,10
Tiempo de recuento	0,10
Parámetros de desintegración	
Decaimiento Ref.	0,01
Decaimiento medida	0,0002
Eficiencia total	0,17
<b>Total</b>	<b>0,44</b>

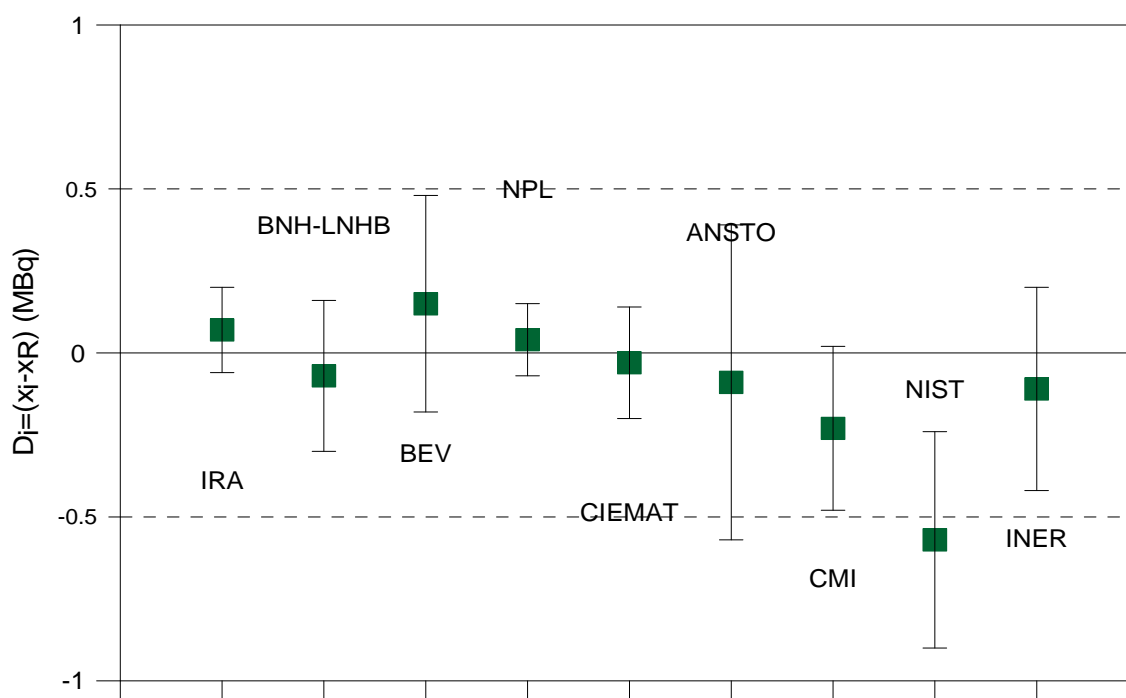
#### Medida con cámara de ionización y comparación de resultados

La disolución se calibró paralelamente con una cámara de ionización modelo IG-11 de CENTRONICS, un electrómetro Keithley 6514 y una fuente de alimentación de BERTAN. La calibración de disoluciones mediante esta cámara se realiza midiendo en una geometría muy reproducible una masa conocida, y registrando la corriente de ionización producida. Mediante un factor de calibración previamente determinado se obtiene el valor de la actividad y, a partir de él y de la masa, el de la concentración de actividad de la disolución medida.

El procedimiento seguido para la calibración de la cámara de ionización se ha descrito previamente [103], y consistió en la calibración absoluta de una disolución de  $^{18}\text{F}$  por medio de dos técnicas: medidas en coincidencia con un contador proporcional presurizado y medidas por centelleo líquido según el método CIEMAT/NIST [103]. Con esta calibración se participó en el Sistema Internacional de Referencia para emisores gamma (SIR) del BIPM [104]. La cámara IG-11 es el instrumento habitual de intercomparación con los laboratorios nacionales de otros países por medio del Sistema Internacional de Pesas y Medidas en París [105]. En la figura 4.18 se presentan los resultados de los distintos laboratorios participantes en la intercomparación de  $^{18}\text{F}$ , en términos grado de equivalencia, junto con la incertidumbre de la medida. El valor de

---

referencia KCRV se ha obtenido con los resultados de los siguientes laboratorios: IRA, BNH-LNHB, BEV, NPL y CIEMAT con la calibración presentada en [103].



**Figura 4. 18. Grado de equivalencia con el KCRV para la comparación BIPM.RI(II)-K1-F-18.**

En la tabla 4.10 se presentan los resultados de la comparación entre los valores obtenidos por el método  $4\pi\gamma$  y por la medida realizada con la cámara IG-11. Son plenamente concordantes.

**Tabla 4. 10.- Resultados de la medida de concentración de actividad de una disolución de  $^{18}\text{F}$  por dos métodos.**

MÉTODO	CONCENTRACIÓN DE ACTIVIDAD (BQ/MG)	U	INCERTIDUMBRE %	Z-SCORE
IG-11	131,5	0,8	0,6	0,3
$4\pi\gamma$	131,2	0,6	0,44	





## 5. MEDIDA DEL PERÍODO DE SEMIDESINTEGRACIÓN MEDIANTE DETECTORES DE GERMANIO

### 5.1. MEDIDA DE PERIODOS CON DETECTORES DE SEMICONDUCTOR

#### 5.1.1. Medida directa

La medida precisa de la actividad de radionucleidos de vida media corta utilizados en medicina nuclear requiere no solo su correcta determinación sino también el conocimiento preciso del periodo de semidesintegración, ya que el valor de la actividad puede tener una variación significativa durante el tiempo de medida debido al valor pequeño del periodo. Según la ley de la desintegración radiactiva, el número de desintegraciones por unidad de tiempo dado, y por tanto de la actividad, está relacionado con el número de con el numero de núcleos radiactivos según:

$$A = \frac{dN}{dt} = -\lambda N$$

donde  $N$  es el número de núcleos radiactivos presentes en la muestra y  $\lambda$  es la constante de desintegración radiactiva, y:

$$\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}$$

donde  $T_{1/2}$  es el periodo de semidesintegración.

Para su determinación se pueden seguir distintas aproximaciones [6, 106]: recuento directo de núcleos radiactivos, medida del crecimiento de los descendientes del nucleido del que se quiere determinar su periodo o la medida de la magnitud del

decaimiento radiactivo durante un tiempo que incluye varios periodos de semidesintegración.

**Recuento directo:** Se basa en la determinación del periodo a partir de la actividad alfa, beta o gamma de una cantidad alícuota del material y del número total de átomos radiactivos presentes en ella. De esta forma la constante de decaimiento se determina según las siguientes expresiones:

$$\lambda = -\frac{dN/dt}{N} = \frac{A}{N}$$

Donde  $A$  es la actividad y  $N$  es el número de átomos del radionucleido en estudio. El material de la fuente puede contener otros nucleidos radiactivos, incluyendo los descendientes del radionucleido. La actividad de las impurezas debe tenerse en cuenta para el cálculo de la actividad total, mediante [107]:

$$N\lambda = A_{Tot} - \sum N_i\lambda_i$$

donde  $\lambda_i$  es la constante de desintegración de la impureza y  $N_i$  es el número de átomos de la misma. Habitualmente se parte de material purificado previamente y la posible contribución de los descendientes generados desde la fecha de la purificación se calcula utilizando las clásicas expresiones de Bateman [108]. Es posible también cuantificar su contribución y la de otras posibles impurezas mediante espectrometría  $\alpha$ ,  $\beta$  y  $\gamma$ .

El número total de átomos ( $N$ ) de una masa de material ( $M_{tot}$ ) y su composición isotópica se puede determinar mediante espectrometría de masas. Finalmente el periodo del radionucleido se calculará mediante la expresión:

$$T_{1/2} = \ln 2 \frac{N/m}{A/m}$$

Esta técnica se ha utilizado para la medida de radionucleidos de vida larga como el  $^{233}\text{U}$ .

**Crecimiento del nucleido hijo:** Esta técnica se basa en la medida de los descendientes acumulados en un periodo de tiempo bien definido. El periodo del radionucleido se obtiene a partir de la determinación precisa de la relación de dos elementos químicos (padre/hijo) y de la composición isotópica de los elementos padre y del hijo al comienzo de la acumulación. En el caso de radionucleidos que tienen un núcleo padre de periodo mucho más corto que el que se quiere determinar y bien conocido se puede determinar el periodo a partir de la expresión [3]:

$$R = \frac{A(hijo)}{A(padre)} = \frac{\lambda_{hijo}}{(\lambda_{hijo} - \lambda_{padre})} (1 - e^{-(\lambda_{hijo} - \lambda_{padre})t_c})$$

donde  $t_c$  es el intervalo de tiempo transcurrido desde la separación química del hijo. Esta técnica se utiliza también en la medida de radionucleidos de vida larga como el  $^{246}\text{Cm}$  [109].

**Medida del decaimiento radiactivo:** En este método, se mide la tasa de emisión de partículas o fotones del nucleido en un intervalo de tiempo adecuado y se determina el periodo de semidesintegración a partir de la constante de desintegración utilizando la expresión:

$$A = A_0 e^{-\lambda t}$$

Donde  $A$  es la actividad de la fuente radiactiva (o la tasa de emisión) en el tiempo  $t$ . Se utiliza un conjunto de valores  $\{A, t\}$  para realizar algún tipo de ajuste funcional que proporcione el valor de  $T_{1/2}$ . La medida de actividad o tasa de emisión puede realizarse con distintos tipos de detectores. Por ejemplo, en el caso de radionucleidos emisores de fotones, la medida se puede hacer con cámaras de ionización, detectores de germanio o detectores de centelleo.

En general, es deseable extender la duración de la medida hasta un tiempo que sea del orden de 4 o 5 veces el periodo que se desea determinar; cuando éste es muy largo no es posible hacerlo y por tanto se utiliza uno de los dos primeros métodos. Los nucleidos de periodo corto son los candidatos ideales para utilizar la técnica de medida del decaimiento radiactivo.

Para la medida de la desintegración, la actividad se puede determinar con diversas técnicas; cada una lleva asociada sus propias dificultades y posibles errores

---

debido a efectos sistemáticos, por lo que, siempre que sea posible, es deseable que se mida con más de una técnica. Las determinaciones del periodo de  $^{18}\text{F}$  realizadas durante los últimos años se han basado fundamentalmente en la medida del decaimiento radiactivo con cámaras de ionización [110]. En este trabajo se propone un método alternativo: la determinación del periodo mediante la medida de la curva de desintegración radiactiva con detectores de Germanio.

### **5.1.2. El problema del tiempo muerto en los sistemas de adquisición basados en detectores de Ge**

El uso de detectores de Ge para la medida de periodos de radionucleidos de vida media corta es problemático debido a dos razones: El problema del tiempo muerto asociado a estos detectores [111, 112] y la posible presencia de inestabilidades.

En todos los sistemas de detección basados en el recuento de impulsos existe un tiempo característico que sigue a cada suceso detectado durante el cual son incapaces de procesar separadamente un nuevo impulso. El límite de tiempo puede establecerlo el detector por sus propias características, el sistema electrónico o puede ser impuesto externamente. A este tiempo se le llama tiempo muerto del sistema de recuento. Debido a la naturaleza aleatoria de la desintegración radiactiva la probabilidad de que un suceso llegue al detector durante el tiempo muerto del sistema siempre es distinta de cero. Las pérdidas por tiempo muerto pueden llegar a ser importantes cuando las tasas de detección son altas y deben ser corregidas para obtener resultados precisos. Las condiciones en las que un suceso no es detectado por el equipo son variadas y dependen de las características del detector y de la cadena electrónica utilizada. Se pueden considerar dos tipos límite de tiempo muerto: el tipo denominado no extensible y el extensible, aunque la mayoría de los sistemas de detección se encuentran entre ambos casos.

Un equipo tiene un tiempo muerto no extensible cuando durante un periodo de tiempo constante y finito  $\tau$ , desde que registra un suceso, es incapaz de registrar separadamente otros sucesos y la llegada de sucesos durante este periodo no alarga el periodo de insensibilidad.

---

Por otra parte, un equipo presenta un tiempo muerto extensible si éste tiene un periodo de insensibilidad a la llegada de sucesos,  $\tau$ , a partir de cada suceso que llega al equipo, aunque este no se registre.

Se define el tiempo vivo del sistema de recuento como el tiempo en el que se pueden registrar los sucesos que llegan al detector, es decir, el tiempo real de recuento menos la suma de todos los tiempos muertos.

Puede ocurrir también que dos impulsos se detecten dentro de un intervalo de tiempo tan pequeño que el sistema de análisis los procese como uno solo, por lo que la amplitud aparente del pulso registrado es igual a la suma de las amplitudes de los dos impulsos. Según sea el grado de solapamiento, la amplitud resultante puede ser una combinación de las amplitudes menores que la suma de ellas. Este fenómeno se conoce como solapamiento de impulsos. Cuando se está registrando sucesos con un detector de fotones el espectro queda distorsionado no sólo porque se pierde resolución en energía sino que también hay una pérdida de sucesos registrados en un determinado pico fotoeléctrico. Así, el resultado final es una disminución cuantitativa del área del un fotopico durante el tiempo vivo de recuento que debe ser corregida de forma apropiada.

Considerando el caso de un detector en el cual el tiempo muerto en cada medida es constante y sin tener en cuenta efectos por apilamiento de impulsos, el periodo se puede determinar a partir de la constante de desintegración según la expresión:

$$\frac{Area(\Delta t(i)_{real})}{\Delta t(i)_{vivo}} = \left( e^{-\lambda t(i)} - e^{-\lambda(t(i) + \Delta t(i)_{real})} \right) N_0 + N_b$$

Donde  $Area(\Delta t(i)_{real})$  se refiere al área del fotopico en la medida  $i$ -ésima e integrado un tiempo real de duración  $(\Delta t(i)_{real})$ ;  $(\Delta t(i)_{vivo})$  es el tiempo vivo;  $t(i)$  es el tiempo de comienzo de la medida  $i$ ;  $N_0$  es la actividad de la fuente en el momento del inicio de la curva y  $N_b$  es la tasa de fondo en el detector.

Para fijar el tiempo de integración del espectro,  $(\Delta t(i)_{real})$ , se tiene que hacer un balance entre varios factores: el decaimiento durante la medida debe ser lo más pequeño posible para no añadir incertidumbre a la medida del área por esta corrección, la tasa debe ser lo suficientemente baja para que las correcciones por tiempo muerto sean también pequeñas, fundamentalmente al principio de la medida cuando las tasas son

---

mayores y finalmente, las tasas deben ser lo suficientemente altas al final del periodo de medida con objeto de que su valor sea significativamente mayor que el del fondo y se tenga una suficiente estadística de recuento. El balance de estos factores hace que la tasa al comienzo de la medida se debe fijar tan alta como sea posible registrar, y por tanto, es muy importante realizar de forma precisa las correcciones por tiempo muerto.

Una vez fijados el intervalo de integración del espectro y la tasa inicial se debe definir muy claramente el método para integrar el espectro, sustraer apropiadamente el fondo, corregir con precisión los efectos debidos al tiempo muerto del sistema y apilamientos de impulsos y finalmente determinar con precisión las incertidumbres experimentales.

La medida correcta del tiempo vivo de la medida es uno de los aspectos fundamentales que influyen en la precisión de este método para la determinación del periodo. Para abordar su estimación existen diferentes aproximaciones.

#### **5.1.2.1 Aproximación analítica.**

En esta aproximación, se calcula de forma analítica la tasa real en el detector a partir de la tasa medida y el conocimiento preciso de la suma de todos los tiempos muertos del equipo. Axton [113] ha estimado la distribución de intervalos de tiempo entre sucesos tanto para tiempo muerto extensible como no extensible, y ha propuesto expresiones que permiten determinar la tasa real de llegada de impulsos a partir de la tasa medida.

Para equipos con tiempo muerto no extensible se puede estimar el número de sucesos detectables aproximados por la fuente,  $N'_0$ , a partir del número de sucesos registrados  $N$ , en un tiempo de recuento  $T$ , según la expresión:

$$N'_0 = \left( \frac{N}{1 - N\tau} - N_b \right) \left( \frac{\lambda T}{1 - e^{-\lambda T}} \right)$$

donde  $N_b$  es la tasa de recuento del fondo y  $\tau$  el tiempo muerto.

Para tiempo muerto no extensible el error que se comete se puede evaluar a partir de las expresiones siguientes:

---

$$N_0 = N'_0(1+k)$$

donde  $N_0$  es el número de sucesos por unidad de tiempo que llegan al detector

Si la tasa de fondo es despreciable en el tiempo de recuento se puede obtener una evaluación de  $k$  a partir de la siguiente expresión:

$$k = N\tau(\lambda T)^2 / 12$$

Con una precisión del 0,1 % en el rango:

$$0 < \lambda T < 2$$

$$0 < N\tau < 0,26$$

En el caso de tiempo muerto extensible el error en la estimación de la tasa utilizando la expresión aproximada anterior es inferior al 0,1 % en el rango:

$$0 < \lambda T < 1$$

$$0 < N\tau < 0,1$$

El principal inconveniente de esta corrección es que para su aplicación es necesario el conocimiento preciso de la naturaleza y el valor del tiempo muerto.

### 5.1.2.2 A partir del tiempo vivo y real definido por el ADC

Este método [111] se basa en asumir que el tiempo muerto en un instante dado de la medida es proporcional a la actividad de la muestra, es decir:

$$t_{real} - t_{vivo} = a_1 - a_2 e^{-\lambda t},$$

y la probabilidad de que se produzca apilamiento de impulsos es proporcional al tiempo muerto. Entonces la estimación de la tasa en cada intervalo de tiempo de mediada se puede corregir a partir de la expresión:



$$\frac{Area(\Delta t(i)_{real})}{\Delta t(i)_{vivo}} = N_0 \left\{ \left( e^{-\lambda t(i)} - e^{-\lambda(t(i)+\Delta t(i)_{real})} \right) + C_1 \left( e^{-2\lambda t(i)} - e^{-2\lambda(t(i)+\Delta t(i)_{real})} \right) + C_2 \left( e^{-3\lambda t(i)} - e^{-3\lambda(t(i)+\Delta t(i)_{real})} \right) \right\}$$

Donde los parámetros  $C_1$  y  $C_2$  se definen en el procedimiento de ajuste por mínimos cuadrados.

### 5.1.2.3 El método de la fuente de referencia

El método de la fuente de referencia para la medida de periodos de semidesintegración mediante detectores de Germanio [114, 115] consiste en el recuento simultáneo del radionucleido que se quiere caracterizar y de una fuente de referencia de periodo largo. El radionucleido de referencia debe emitir sólo uno o dos fotones gamma.

Se define  $R$  como la razón entre el área del nucleido problema ( $A_p$ ) y el de referencia ( $A_r$ ):

$$R = \frac{A_p}{A_r}$$

De forma que la razón  $R$  varía con el tiempo según:

$$R(t) = \frac{A_{p0} e^{-\lambda_p t}}{A_{r0} e^{-\lambda_r t}} = R_0 e^{-(\lambda_p - \lambda_r) t}$$

El método se basa en que las correcciones aplicables a la fuente problema por tiempo muerto y apilamiento de impulsos también se tienen que aplicar a la fuente de referencia, de forma que la razón entre áreas se mantiene constante durante el tiempo de medida. El periodo de la fuente de referencia tiene que tener una incertidumbre relativa lo más baja posible y su valor tiene que ser significativamente mayor que el periodo que se quiere determinar para que no repercuta significativamente en la incertidumbre de la medida.

Cuando se miden periodos de radionucleidos muy cortos, es preciso que el radionucleido de referencia tenga una tasa de recuento lo suficientemente alta como para que el área del fotopico correspondiente sea estadísticamente significativa. Esto

aumenta la tasa total de recuento en el detector, por lo que las correcciones serán aún mayores.

#### 5.1.2.4 Mediante la técnica de rechazador de impulsos apilados

Un sistema rechazador de apilamiento de impulsos es capaz de detectar el número de sucesos entrantes al sistema y de rechazar un impulso procesado si detecta otro en un intervalo de tiempo determinado,  $\tau$ . Pesando el número de impulso entrantes y rechazados se puede obtener la corrección. Se define el número de los sucesos entrantes ( $N_x(\Delta t(i)_{real})$ ) y los rechazados por el sistema ( $N_x^R(\Delta t(i)_{real})$ ) debido a que estos estén modificados por sucesos anteriores cercanos, e integrados un tiempo real de duración ( $\Delta t(i)_{real}$ ) donde  $i$  se refiere al intervalo de tiempo. El número de sucesos detectados es:

$$M_x(\Delta t(i)) = N_x(\Delta t(i)) - N_x^R(\Delta t(i))$$

Para un pico gamma determinado la tasa corregida es:

$$N_A(i) = \sum_x \frac{N_x(i)}{M_x(i)} M_A(i)$$

Aunque esta técnica permite extender el rango de utilización de los equipos de medida a tasas mas altas, no permite realizar las correcciones de tiempo muerto con la precisión suficiente.

#### 5.1.2.5 Expresiones para calcular analíticamente el apilamiento de impulsos

Otro procedimiento para cuantificar la tasa de sucesos real que llega a un detector de Germanio es mediante un recuento sistemático de los efectos que producen el apilamiento de impulsos para la determinación del área bajo un fotopico. El objetivo final es obtener expresiones precisas de las correcciones por tiempo muerto y apilamiento de impulsos, de forma que la tasa real se pueda cuantificar a partir de la tasa medida. Grynyer et al. [116] han analizado de forma analítica todos los posibles efectos que pueden ocurrir en un detector durante la detección, es decir: post-apilamiento o

---

sucesos apilados después de un registro; pre-apilamiento o un apilamiento debido a suceso que se registra en el tiempo de apilamiento de un suceso anterior que no ha sido registrado, ya que ha llegado al detector durante el tiempo muerto de un suceso registrado anteriormente.

Basándose en la forma de la distribución de intervalos de tiempos han obtenido una expresión analítica de la probabilidad de apilamiento total, que debe resolverse junto con la tasa en el detector para deducir el periodo. Las expresiones que se obtienen son del tipo siguiente:

$$x(t) = x_0 e^{-(\ln 2 / T_{1/2})t} + x_b$$

$$P(t) = 1 - e^{-2x} (1 + x)$$

donde  $x$  es la tasa adimensional,  $x = R\tau_p$ , es decir: la tasa en el detector,  $R$ , multiplicada por el tiempo de apilamiento,  $\tau_p$ ;  $x_0$  es la tasa adimensional en el instante inicial,  $R_0\tau_p$ , y  $x_b$  es la tasa adimensional del fondo,  $R_b\tau_p$ .  $P(t)$  es la probabilidad de apilamiento cuando se considera pre y post apilamiento.

Otros factores que se pueden considerar son:

- Apilamientos cuando se utiliza un circuito que rechaza impulsos apilados con un tiempo de resolución menor que el tiempo de apilamiento,  $\tau_p$ , pero que no puede rechazar sucesos que se registran en un tiempo menor de su tiempo de resolución  $\tau_r$ . En general el tiempo de resolución del rechazador de impulsos es menor que el tiempo de apilamiento ( $\tau_r \ll \tau_p$ ). La expresión de la probabilidad de apilamiento debe ser modificada para reflejar este hecho.
- Efectos debido a la energía mínima de discriminación de registros de impulsos. Hasta ahora se ha asumido que todos los sucesos que llegan al detector han sido detectados por el sistema si llegan en un tiempo mayor que el tiempo muerto del sistema. Pero esta aproximación no refleja la realidad, ya que normalmente se utiliza algún tipo de discriminador para eliminar el ruido de baja energía. Sin embargo, la probabilidad de que un suceso sea post-apilado es independiente de que el suceso sea o no discriminado por sobrepasar el umbral de energía.

- Finalmente, efectos de los rayos cósmicos en el tiempo muerto.

Las expresiones para la probabilidad de apilamiento son más complejas cuando se consideran factores adicionales como los ya mencionados.

#### **5.1.2.6 Sistemas digitales para el control de tiempo muerto**

Los sistemas digitales de adquisición permiten el procesamiento de impulsos para espectrometría de alta resolución y el registro tanto del resultado del procesamiento como de la marca de tiempo de los mismos. Estos sistemas tienen la propiedad de que pueden funcionar sin pérdidas por tiempo muerto. Por ello la adquisición digital de impulsos tiene muchas ventajas sobre los sistemas convencionales analógicos y facilita la medida de la tasa de desintegración radiactiva. Los datos de los experimentos se pueden guardar y analizar posteriormente con diferentes parámetros (por ejemplo imponiendo distintos tiempos muertos) lo que permite optimizar el procesamiento de la señal.

Estos sistemas permiten un procesamiento análogo a los sistemas analógicos y por tanto la comparación entre las correcciones efectuadas por los procedimientos anteriormente presentados. Las ventajas teóricas que presentan estos sistemas nos han llevado a estudiar su aplicación para la medida de periodos en nucleidos de vida corta. Las características básicas del sistema utilizado y su aplicación a algunos casos concretos se describirán a continuación.

## 5.2. ADQUISICIÓN DIGITAL DE IMPULSOS

### 5.2.1. Equipo experimental

#### 5.2.1.1 Detectores utilizados

El sistema experimental está formado por dos detectores de Germanio ultrapuro, ambos de la marca CANBERRA:

- Un detector plano con un cristal de 36 mm de diámetro y 15 mm de espesor.
- Un detector coaxial de rango extendido (ya utilizado y descrito en las secciones anteriores).

El detector coaxial está rodeado, como ya se explicó, por un blindaje cúbico de 10 cm de plomo. Por otra parte, el detector de Ge plano tiene un blindaje más ligero, esto es, un cilindro de plomo de 3 cm de espesor. Como consecuencia la tasa de fondo en el detector plano ha sido significativamente mayor que en las medidas realizadas con el detector coaxial. Así, los fondos medios medidos en tales condiciones para el detector coaxial y plano son de  $1,4 \text{ s}^{-1}$  y  $5 \text{ s}^{-1}$  respectivamente.

#### 5.2.1.2 Sistema digital de adquisición

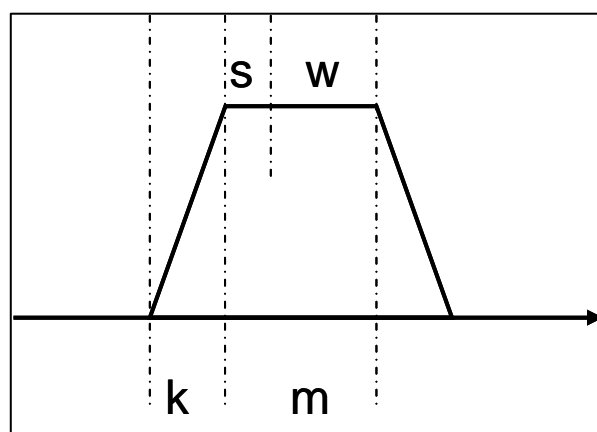
El sistema se completa con un dispositivo de adquisición digital modelo N1728B fabricado por CAEN<sup>TM</sup> que se conecta a la salida de los preamplificadores de los detectores de Germanio. La señal de entrada se muestrea a una tasa de  $10^8$  muestras  $\text{s}^{-1}$  y se procesa en tiempo real siguiendo el método descrito entre otros por Jordanov y Knoll y por Georgiev y Gast [117, 118].

La técnica consiste en la construcción de una forma de impulso óptima para la espectrometría gamma de alta resolución utilizando algoritmos digitales recursivos, de forma que se puedan implementar en tiempo real cuando la señal de entrada es muestreada digitalmente a intervalos de tiempo fijos. En los dispositivos espectrométricos utilizados habitualmente en la detección de la radiación el sistema detector–preamplificador produce impulsos con un tiempo de subida muy corto seguido

por una cola larga que cae de forma exponencial. El algoritmo convierte este tipo de impulsos en otros que tienen una forma trapezoidal.

Los parámetros que definen el trapezoide en la escala temporal son (ver figura 5.1):

- El tiempo de subida ( $k$ ), y la longitud temporal de la parte plana y superior del trapezoide ( $m$ ).
- El desplazamiento desde el comienzo de la superficie del trapezoide hasta que comienza el cálculo de su altura para la determinación de la energía ( $S$  o *shift*)
- y  $W$  que es la anchura en nanosegundos de la superficie del trapezoide que se utilizan para el cálculo de la energía.



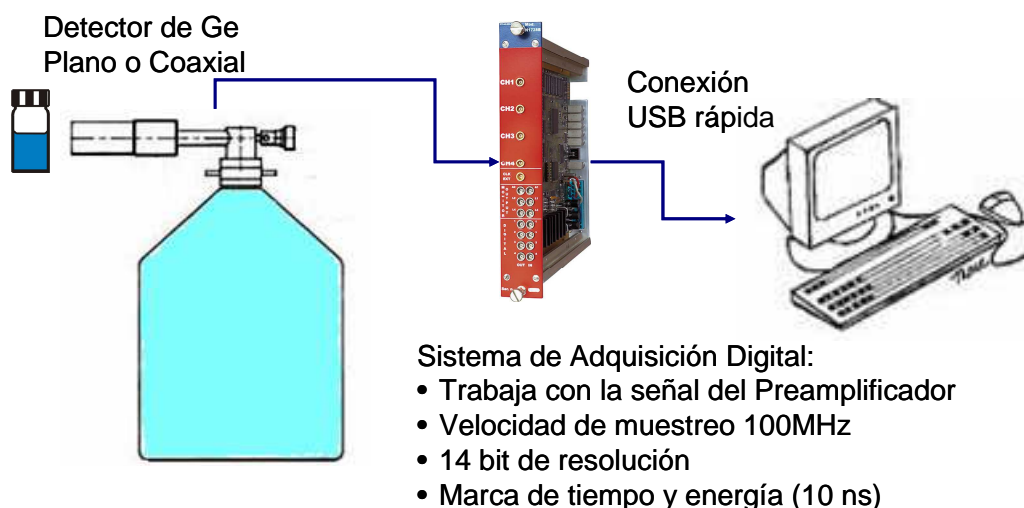
**Figura 5. 1. Forma trapezoide del impulso y parámetros que lo definen**

La ventaja de la forma trapezoidal es que evita pérdidas en la resolución en energía por déficit balístico. Esto ocurre cuando, al procesar un impulso analógicamente, la amplitud del impulso procesado es menor que la correspondiente a un tiempo de conformación del impulso muy largo. Los parámetros que definen el trapezoide deben elegirse de forma que  $W$  sea lo suficientemente ancha como para acomodarse a posibles variaciones en el tiempo de subida, pero debe ser lo más corta posible para que la anchura total del impulso sea la menor posible para minimizar los efectos de apilamiento de impulsos.

El módulo de adquisición incluye un detector de apilamiento de impulsos o PUR (*pile-up rejector*) y permite elegir entre dos modos de funcionamiento. En el modo normal, si se detecta un impulso antes de que termine la conformación del anterior, se rechaza el segundo; en el modo de activación se rechazan ambos. Para las medidas descritas en esta memoria, se han ajustado los parámetros de conformación del impulso para que la duración total sea inferior a 2  $\mu$ s y no se ha activado el PUR, con objeto de poder registrar el mayor número de sucesos por unidad de tiempo con la menor pérdida de sucesos posible.

Una ventaja adicional de este sistema respecto a otros convencionales es que se obtiene la marca de tiempos de cada impulso con una resolución de 10 ns (la frecuencia de muestreo es de 100 MHz). Los resultados de la medida se almacenan en un fichero binario que contiene la amplitud y la marca de tiempos de todos los impulsos registrados con una resolución de 14 bit. También se almacena el número de disparo o trigger.

En la figura 5.2 se presenta un esquema del sistema de medida.



**Figura 5. 2. Sistema experimental**

### 5.2.1.3 Procesamiento de datos

El procesamiento de los datos se ha realizado con un programa FORTRAN cuyas características y modo básico de funcionamiento son los siguientes.

- El programa lee el fichero de datos binario generado por el sistema digital de adquisición a partir de los impulsos procesados y registrados.
- A continuación se puede imponer un tiempo muerto externo, que puede ser extensible o no extensible, de forma que aquellos impulsos que se hayan registrado en un intervalo de tiempo menor que el tiempo muerto impuesto no son procesados.
- Se clasifican los impulsos de acuerdo con su amplitud, generando el histograma de amplitudes de impulso
- De la misma manera, el programa clasifica los impulsos en función del intervalo de tiempo transcurrido entre la detección de dos impulsos consecutivos y genera de esta forma el histograma de la distribución de intervalos de tiempo
- Después se puede seleccionar los impulsos de una parte del espectro.
- A continuación se genera la curva de desintegración mediante la integración de todos los impulsos registrados sucesivamente durante un intervalo de tiempo dado para todas las medidas de aquellos impulsos que tengan una amplitud dentro de los límites elegidos y que no hayan sido rechazados por tiempo muerto.
- Seguidamente se implementan las correcciones por tiempo muerto no extensible [113].
- Para obtener el periodo se realiza un ajuste no lineal con un programa FORTRAN mediante un algoritmo Levenberg-Marquardt, el cual permite tener en cuenta la contribución de otros radionucleidos presentes.

Para asegurar el funcionamiento correcto del proceso que se empleará, se ha realizado una simulación Monte Carlo de todo él, desde la generación del fichero con

---



las amplitudes y la marca de tiempo de cada impulso registrado en el detector hasta las correcciones por tiempo muerto, la generación de la curva de decaimiento y el ajuste final del periodo. Para la generación del fichero de amplitudes y tiempos se ha simulado la interacción de la radiación con el detector y materiales interpuestos con el código PENELOPE modificado para simular el tiempo en que se genera la partícula. En la siguiente sección se explicará el procedimiento seguido para ello.

### **5.2.2. Simulación Monte Carlo del proceso de la desintegración radiactiva**

La simulación de Monte Carlo de todo el proceso tiene como objeto comprobar la aplicabilidad de las correcciones realizadas con el sistema digital bajo distintas condiciones experimentales. En particular, se comprobarán los siguientes aspectos:

- El valor de las correcciones por el tiempo muerto impuesto estudiando la forma en que su valor repercute sobre la tasa final corregida para distintos valores de la tasa y la forma en la que afecta la naturaleza del tiempo muerto aplicado (extensible o no extensible) a la corrección
- Los efectos que los parámetros anteriores producen en el periodo calculado y
- El efecto del apilamiento en la forma de los impulsos en el espectro generado.

Antes de empezar a analizar los diferentes efectos, se describirá la implementación del tiempo de generación de la partícula en el código PENELOPE.

#### **5.2.2.1 Distribución de intervalos de tiempo**

Para la simulación Monte Carlo se ha utilizado el código PENELOPE al igual que en apartados anteriores. La geometría del detector y de la fuente de medida es la optimizada en los capítulos 2 y 3 respectivamente.

Puesto que el código PENELOPE no simula el instante de emisión de una partícula de la fuente, se ha modificado para permitir la generación de la distribución de intervalos de tiempo de acuerdo con la distribución de Poisson. Esta describe la distribución en tamaños del intervalo de tiempo entre sucesos sucesivos en un proceso aleatorio en el cual la tasa media tiene un valor constante de “ $a$ ” sucesos por unidad de tiempo. Su expresión es:

$$P_x = \frac{m^x}{x!} e^{-m}$$

donde  $m$  es el número medio de sucesos y  $x$  es el número de sucesos con una probabilidad  $P_x$ . Si  $a$  es la tasa promedio de emisión, entonces el número promedio de sucesos en un intervalo  $t$  es  $at$ . La probabilidad de observar  $x$  partículas en un tiempo  $t$  [6] y es igual:

$$P_x(t) = \frac{(at)^x}{x!} e^{-at}$$

La probabilidad de que no se observe ningún suceso en un intervalo de tiempo  $t$ , siendo el número medio de sucesos en este intervalo de tiempo  $at$ , es:

$$P_0(t) = \frac{(at)^0}{0!} e^{-at} = e^{-at}$$

La probabilidad de que se observe un suceso en un intervalo de tiempo  $dt$  es, simplemente,  $a dt$ . La probabilidad combinada de que no se observe ningún suceso en el intervalo de tiempo  $t$  y a la vez, se observe un evento en el intervalo de tiempo entre  $t$  y  $t + dt$  es  $ae^{-at} dt$ . La probabilidad  $dP_t$  de que la duración de un intervalo de tiempo cualquiera sea un tiempo entre  $t$  y  $t + dt$  será:

$$dP_t = ae^{-at} dt$$

Por tanto, los intervalos de tiempo más pequeños tienen una probabilidad mayor que los intervalos de tiempo más largos en una distribución aleatoria de sucesos descrita por una distribución de Poisson.

### 5.2.2.2 Generación de tiempo transcurrido entre sucesos primarios

La fracción de intervalos de tiempo menores que  $T$  es:

$$\int_0^T ae^{-at} = x$$

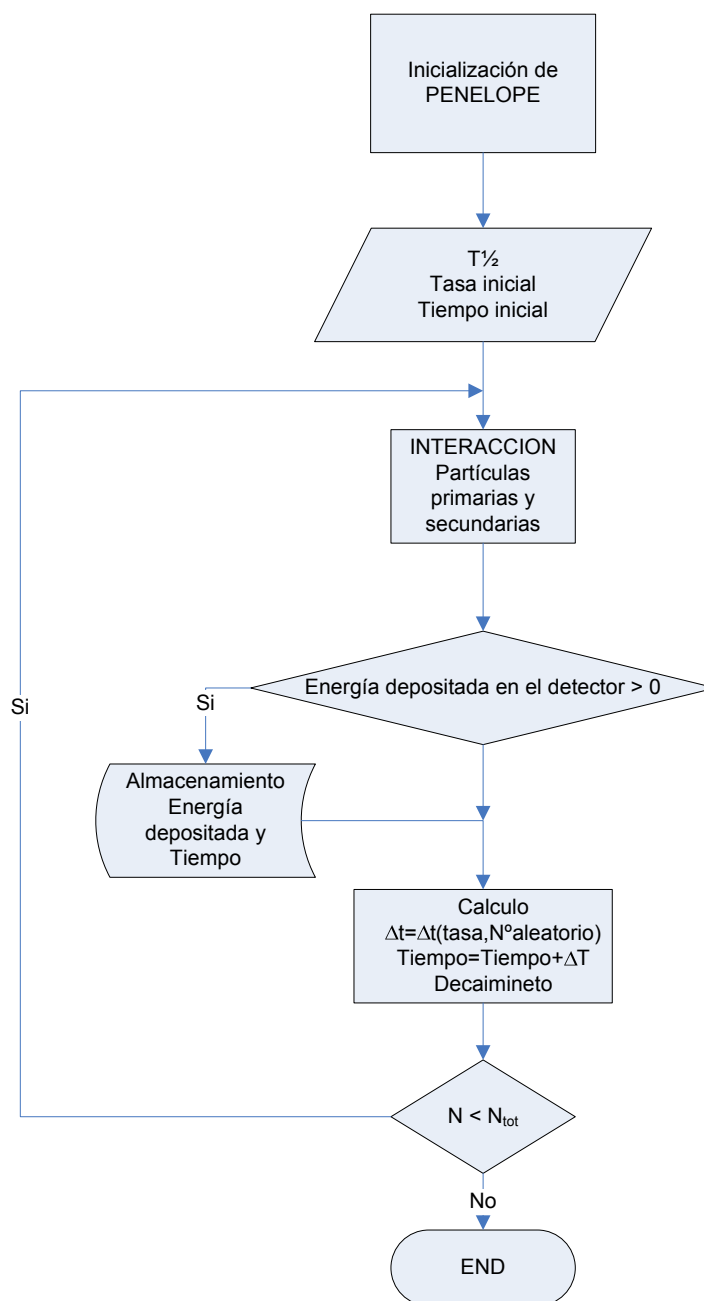
De forma que  $T$  es igual:

$$T = -\frac{1}{a} \ln(1-x) \Rightarrow T = -\frac{1}{a} \ln(x)$$

siendo  $x$  un número aleatorio entre 0 y 1 obtenido de una distribución uniforme.

Hemos adaptado el código PENELOPE para que después de la simulación de cada partícula primaria se genere un intervalo de tiempo aleatorio, según la distribución de intervalos de tiempo deducida anteriormente y que, por tanto, será función de la tasa de emisión, introducida en el fichero de entrada. Con este tiempo se ha calculado una nueva tasa de emisión corrigiendo por decaimiento de la fuente radiactiva a partir de un periodo de semidesintegración fijado por el usuario del código. En un fichero se exporta el tiempo y la energía depositada en el detector siempre que la partícula primaria o las secundarias interaccionen con el detector, es decir, si la energía depositada por la partícula es mayor que cero.

De esta forma se obtiene un fichero de similares características al que se obtendría mediante la adquisición digital en un experimento real. Puesto que se trabaja con un detector virtual, el resultado no está afectado por tiempo muerto, de manera que todas las partículas generadas y que depositan energía en el detector quedan registradas. Este fichero puede ser reformado posteriormente para introducir distintos tipos y magnitudes de tiempo muerto. En la figura 5.3 se representa el diagrama de flujo utilizado para el cálculo.



**Figura 5. 3. Diagrama de flujo del programa PENELOPE modificado para la determinación del intervalo de tiempo entre la emisión de dos partículas consecutivas desde la fuente radiactiva.**

### 5.2.2.3 Generación de un tiempo muerto característico

Una vez generado el fichero de amplitudes de impulso y tiempo se simula un tiempo muerto característico del detector. Este debe ser representativo del sistema de adquisición digital y se impone mediante el programa FORTRAN. El tiempo muerto aplicado ha sido 2  $\mu$ s (apartado 5.1.3.2). En principio se ha supuesto que éste debe ser no extensible ya que mientras se está procesando un impulso el sistema no puede analizar otro, aunque sí quedaría registrado el *trigger*. Mas adelante se estudiará cual es el efecto de considerar, tanto un tiempo muerto extensible como no extensible en los resultados.

### 5.2.2.4 Análisis de la distribución de intervalos de tiempo

Con el esquema representado en la figura 5.3 se ha obtenido una serie de valores de tiempos de emisión para una tasa de 20000 s<sup>-1</sup>, correspondiente a la tasa máxima que vamos a estudiar. En primer lugar se ha simulado un periodo de semidesintegración muy largo, de 10<sup>8</sup> s, con objeto de analizar la distribución de intervalos de tiempo generado sin que haya interferencias con la curva de desintegración. El número total de sucesos simulados ha sido 10<sup>6</sup>. En la figura 5.4 se presenta la distribución de intervalos de tiempo obtenida de esa forma para un detector sin tiempo muerto. En la figura 5.5 se presenta la misma distribución para un detector con un tiempo muerto no extensible de 2  $\mu$ s y con un tiempo muerto extensible de 2  $\mu$ s. Se ha realizado un ajuste de la curva resultante a la exponencial:

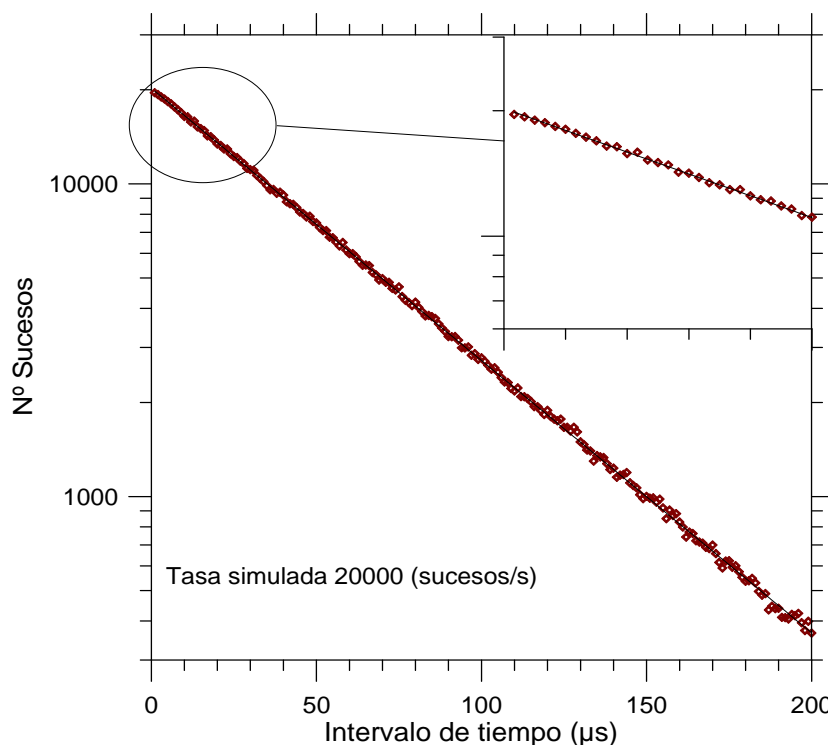
$$f(\Delta t) = e^{-a\Delta t}$$

Donde  $a$  es la tasa expresada en sucesos/s y  $\Delta t$  es el intervalo de tiempo en  $\mu$ s. El ajuste no lineal se ha realizado con un programa FORTRAN mediante un algoritmo Levenberg-Marquardt. En cada gráfica, además de la distribución obtenida mediante la simulación Monte Carlo, se ha representado el resultado del ajuste para el primer caso analizado: un detector sin tiempo muerto. En la tabla 5.1 se representa los valores obtenidos en el ajuste. Se puede ver que la diferencia entre el valor simulado y el obtenido es como máximo de un 0,3 % cuando se simulan 10<sup>6</sup> sucesos, esta diferencia se debe a la secuencia de números aleatorios utilizada.

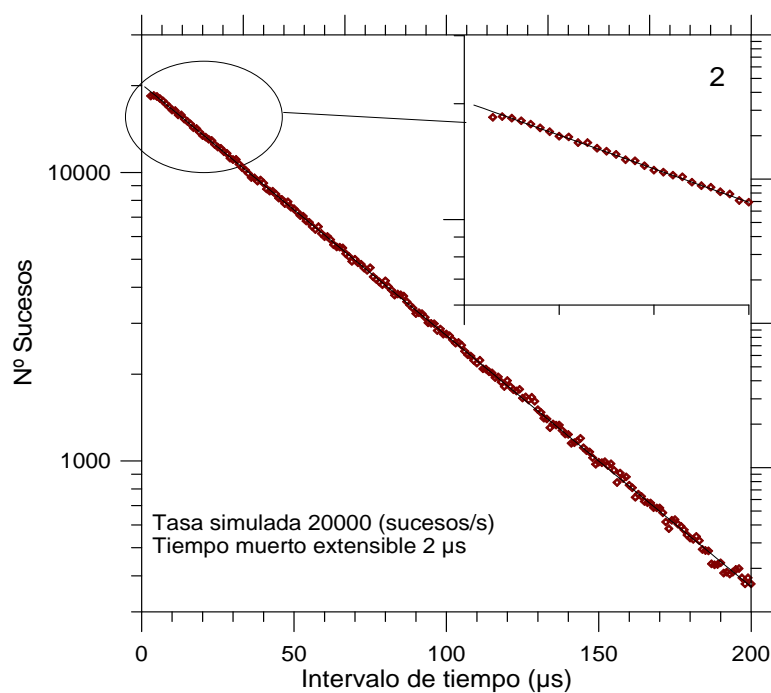
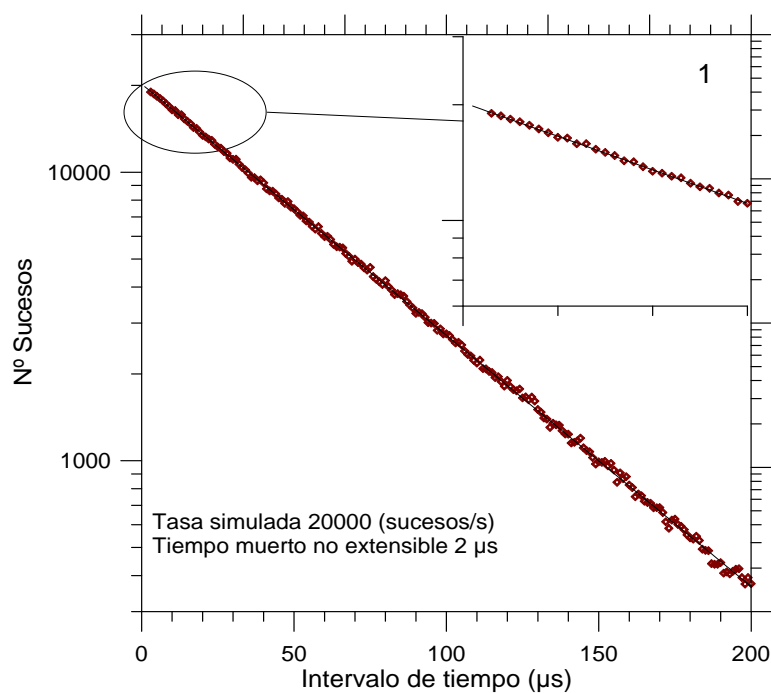
**Tabla 5. 1. Tasa obtenida a partir de la distribución de intervalos de tiempo obtenida mediante la simulación Monte Carlo de una tasa de 20000 sucesos /segundo y un periodo de  $10^8$ s analizado sin aplicar tiempo muerto y después de imponer un tiempo muerto de 2  $\mu$ s no extensible y extensible.**

Tiempo Muerto	Tasa (u) s <sup>-1</sup>	$(T_c - T_s)/T_s$ %	$\chi^2$
Sin tiempo muerto	20055 (20)		1,017
$\tau = 2 \mu$ s no extensible	20065 (21)	0,05	1,031
$\tau = 2 \mu$ s extensible	20049 (22)	-0,03	1,086

En la tabla 5.1 se ha presentado además, la diferencia entre la tasa simulada ( $T_s$ ) y la tasa obtenida después de la generación y corrección de un tiempo muerto ( $T_c$ ), tanto cuando se aplica un tiempo muerto no extensible como extensible, normalizada a la tasa simulada y expresada en tanto por ciento ( $(T_c - T_s)/T_s$  %). Se ve que las diferencias en los dos casos y para tiempo muerto aplicado de 2  $\mu$ s son muy pequeñas, inferiores al 0,05 %. Lo que demuestra que la corrección es muy pequeña (inferior al 0,05 %) para los dos tipos de tiempo muerto estudiado.



**Figura 5. 4. Distribución de intervalos de tiempo obtenida mediante la simulación por el método de Monte Carlo para una tasa de 20000 sucesos/segundo en un detector sin tiempo muerto.**



**Figura 5. 5. Distribución de intervalos de tiempo obtenida mediante la simulación por el método de Monte Carlo para una tasa de  $20000 \text{ s}^{-1}$ . 1: Detector que tiene un tiempo muerto no extensible de  $2 \mu\text{s}$ . 2 Detector con un tiempo muerto extensible de  $2 \mu\text{s}$ .**

### 5.2.2.5 Decaimiento durante la medida

Para obtener la curva de desintegración radiactiva se necesita decidir el intervalo de tiempo en el que se integrarán los sucesos detectados en cada punto de la curva de desintegración. El criterio seguido ha sido que la corrección por decaimiento sea tan baja como sea posible durante todo el periodo de medida, lo que debe hacerse compatible con la adquisición de un número de impulsos por intervalo que sea estadísticamente significativo.

Así, por ejemplo, en el caso de  $^{18}\text{F}$  que tiene un periodo de 1,8288 h y seleccionando un tiempo de medida de 20 segundos, el decaimiento durante la medida,  $\left(\frac{\lambda T}{1 - e^{-\lambda T}}\right)$ , sería de 1,001. Esta corrección se aplicaría a todos los intervalos de tiempo necesarios para el cálculo del periodo de semidesintegración y se ajustará en función del periodo del radionucleido estudiado para que sea del orden del 0,1 %

### 5.2.2.6 Corrección por tiempo muerto

La corrección por tiempo muerto depende de la tasa. Por tanto, su valor varía fuertemente a lo largo del tiempo. Al principio de la curva de decaimiento se tienen las tasas más altas y por tanto su valor es apreciable, a diferencia de lo que ocurre al final donde prácticamente se puede despreciar la corrección.

Con el algoritmo presentado en la figura 5.3 se han generado sucesos a diferentes tasas. Para cada tasa, el número total de sucesos generados ha sido siempre de  $10^6$ . En cada caso se conoce el número de sucesos detectados real ( $n_0$ ) generado a partir del calculo Monte Carlo. A los sucesos generados se les ha aplicado un tiempo muerto no extensible de 2  $\mu\text{s}$ , que es el tiempo muerto máximo que se espera tener en las condiciones experimentales. Finalmente, se ha calculado las tasas detectadas corregidas ( $n_0'$ ) para diferentes tiempos muertos aplicados, siguiendo la ecuación ya presentada anteriormente, y normalizadas a la tasa de sucesos real generados ( $n_0$ ). Se ha estudiado hasta una tasa de recuento máxima de  $20000 \text{ s}^{-1}$  y tiempo muerto no extensible ( $\tau$ ) de 20  $\mu\text{s}$ .



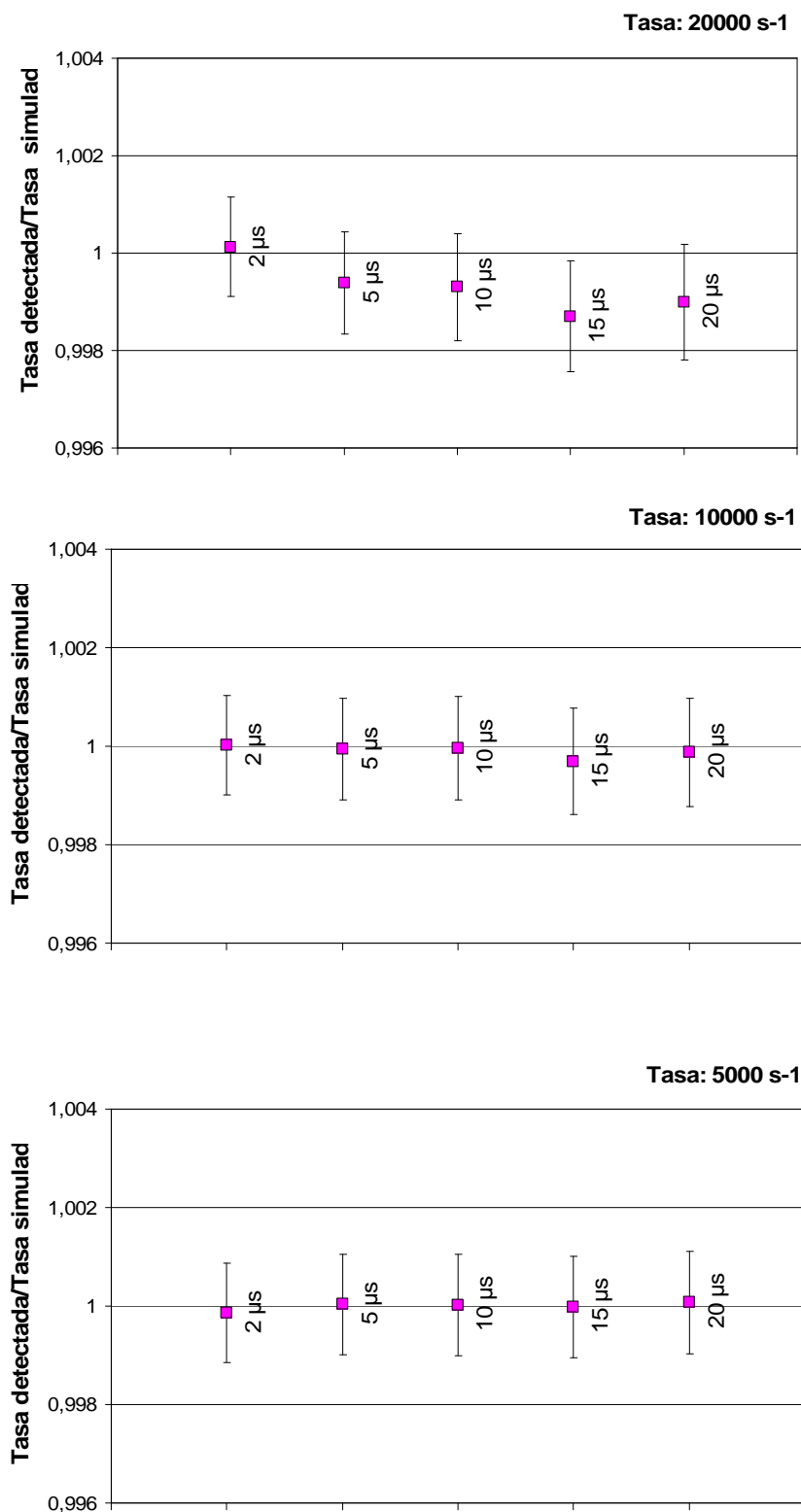


Figura 5. 6. Tasas de recuento corregidas, con diversos tiempos muertos no extensibles, y normalizadas a las tasas generadas a partir del cálculo Monte Carlo. La mayor desviación encontrada es de un 0,1 %.

En la figura 5.6 se ha representado la relación entre  $n'_0$  y  $n_0$  para varias tasas y distintas correcciones por tiempo muerto. Se observa que la relación entre tasas es en estas condiciones muy cercana de la unidad. La corrección mayor corresponde a una tasa de  $20.000 \text{ s}^{-1}$  con un tiempo muerto de  $20 \text{ } \mu\text{s}$ . Para este caso, la mayor desviación encontrada entre la tasa generada y la corregida tras aplicar un tiempo muerto sería de menos del 0,1 %. Por tanto, se podría utilizar tasas de hasta  $20000 \text{ s}^{-1}$  para la medida del periodo esperándose que las diferencias entre los valores reales y corregidos debido a las correcciones por tiempo muerto de las tasas sean inferiores del 0,1 % .

#### 5.2.2.7 Resultado de la estimación del Periodo

A continuación se han generado una serie de sucesos a partir del cálculo de Monte Carlo, suponiendo una tasa inicial detectada de 20000 sucesos/segundo y un periodo de semidesintegración de 1,8288 horas, en unas condiciones similares a las esperadas durante la medida del periodo de  $^{18}\text{F}$ . El número de sucesos totales generados cubren aproximadamente 2000 intervalos de tiempo de 20 segundos cada uno. El número total de sucesos simulados ha sido de  $6 \cdot 10^8$ . Para generar la curva de decaimiento se ha seguido el algoritmo representado en la figura 5.3, con la tasa de emisión y tiempo apropiado. De esta manera, el tiempo total simulado es al menos el equivalente a 7 periodos de semidesintegración del  $^{18}\text{F}$ .

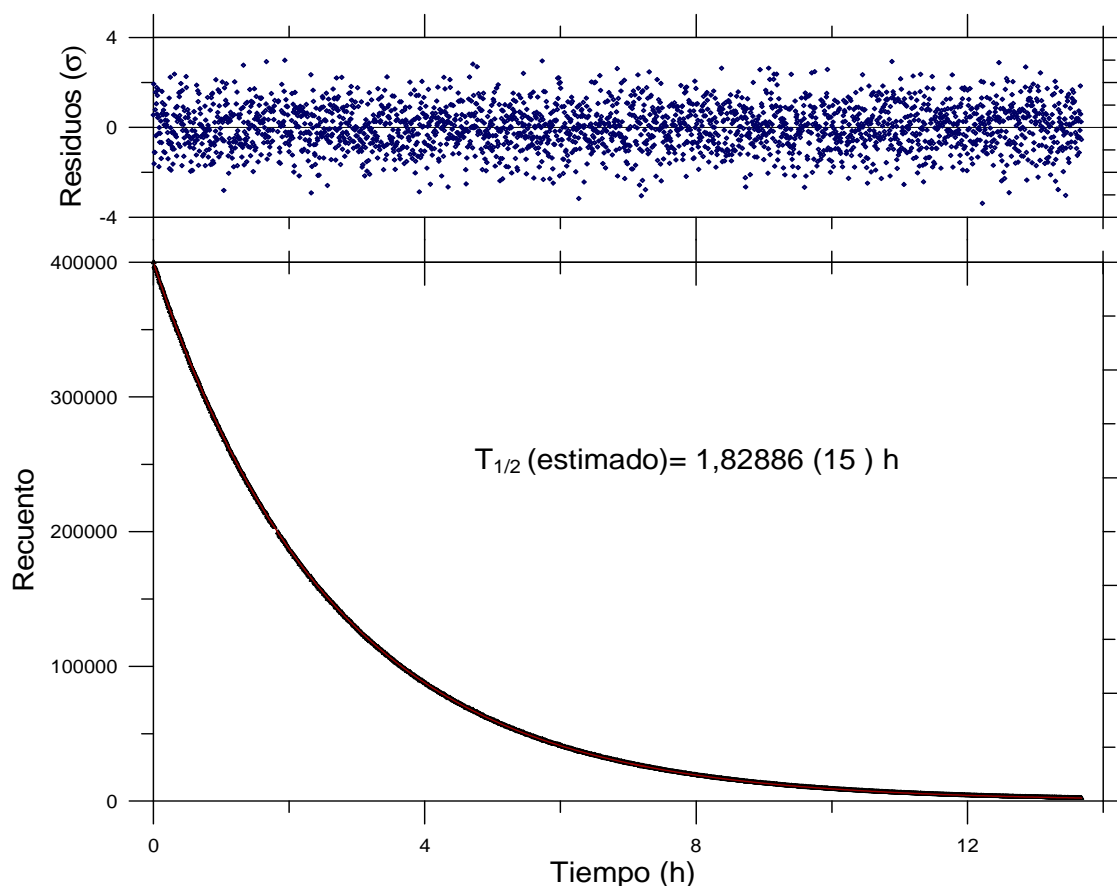
Para estimar el efecto de la posible falta de aleatoriedad de las series de números necesarios para el cálculo de los diferentes tiempos de emisión de partículas, se han generado para la estimación de la curva de decaimiento un total de 3 curvas de decaimiento utilizando distintos generadores de números aleatorios: la primera serie con el algoritmo de generación implementada en PENELOPE y dos series que utilizan el algoritmo RAND3 [74] inicializando con diferentes valores la serie. El valor del periodo es el promedio de los obtenidos con cada una de las series de números aleatorios.

Para cada una de las simulaciones realizadas se obtiene un fichero que contiene una lista de energía depositada en el detector y tiempo de emisión desde la fuente, o lo que es lo mismo, tiempo de detección. A partir de cada fichero se ha obtenido la curva de decaimiento considerando un hipotético detector sin tiempo muerto, es decir: toda

---

partícula que llega al detector puede ser contada, independientemente del intervalo de tiempo que la separa de la anterior.

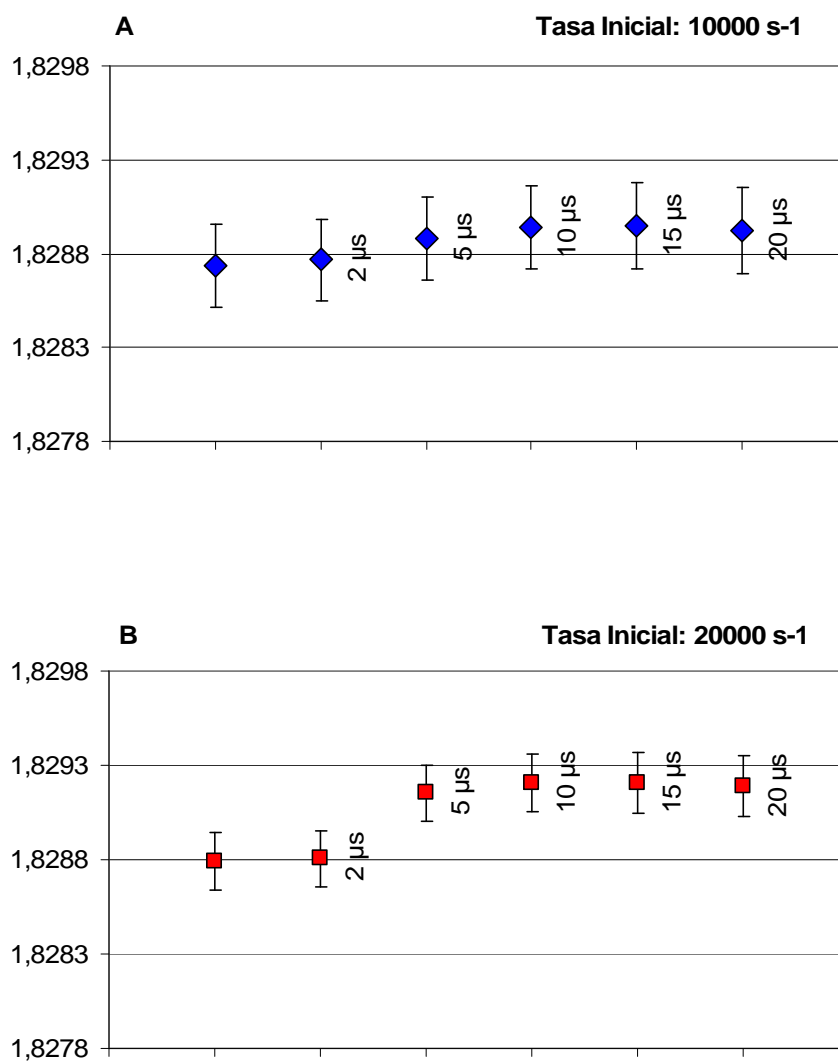
Se han agrupado los sucesos detectados en intervalos de tiempo,  $T$ , de 20 segundos y de esta forma se ha construido la curva de decaimiento que se presenta en la figura 5.7. Para obtener el periodo se ha realizado un ajuste no lineal con un programa FORTRAN mediante un algoritmo Levenberg-Marquardt. En la misma figura se han representado los residuos del ajuste de la curva expresado en términos de la desviación estándar. El valor final de la incertidumbre del periodo para cada ajuste se obtiene a partir del elemento correspondiente de la matriz de covarianzas del ajuste y el valor de la  $\chi^2$  reducida, de acuerdo con lo indicado en [74].



**Figura 5. 7. Curva de decaimiento obtenido a partir del cálculo Monte Carlo con un periodo de 1,8288 h ( $T_{1/2}$  del  $^{18}\text{F}$ ) y residuos del ajuste de la curva expresado en términos de la desviación estándar.**

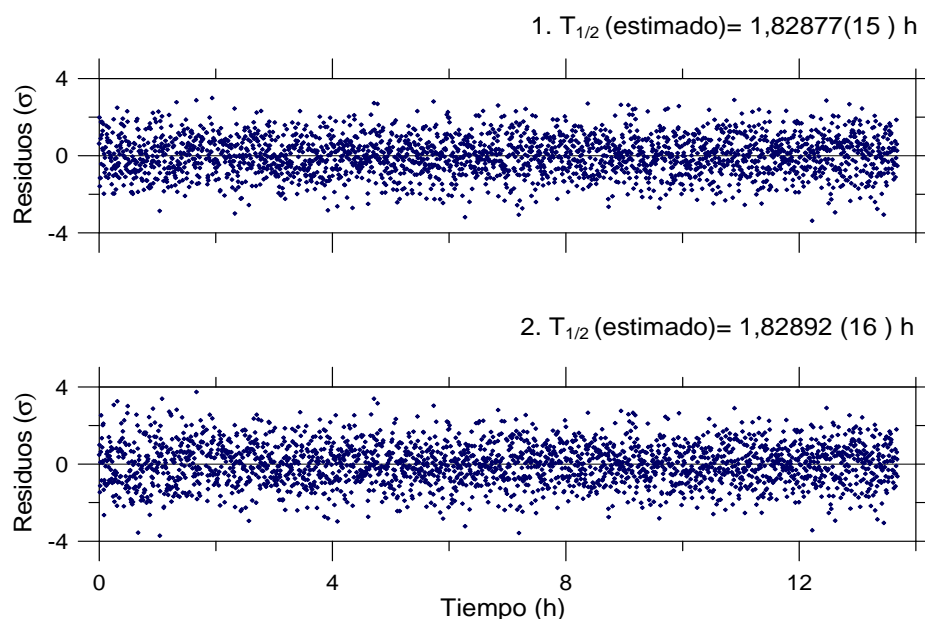
Posteriormente, a cada una de los ficheros generados se ha aplicado el tiempo muerto característico del equipo de medida, es decir, el tiempo muerto correspondiente a la suma de todos los tiempos muertos esperados para la conformación del impulso que, como ya se ha mencionado, se espera de aproximadamente  $2\text{ }\mu\text{s}$ . De esta forma se ha generado una nueva serie de ficheros de sucesos (energía depositada en el detector y tiempo). Los ficheros de sucesos generados se han analizado de nuevo para calcular el periodo de semidesintegración aplicando distintas correcciones por tiempo muerto: desde  $2\text{ }\mu\text{s}$  hasta  $20\text{ }\mu\text{s}$ . En la figura 5.8 se representan los distintos periodos calculados (como el promedio de las tres series de sucesos generados) aplicando distintas correcciones por tiempo muerto no extensibles y considerando dos tasas de inicio:

- En el primer caso (A) se parte de una tasa de sucesos detectados de  $10000\text{ s}^{-1}$  y se realiza el cálculo del periodo a partir de la curva de desintegración durante un periodo de tiempo de 6 periodos de desintegración (11 horas). La mayor desviación entre periodo calculado para un detector sin tiempo muerto y después de realizar distintas correcciones por tiempo muerto es de un  $0,01\text{ }\%$ .
- En el segundo caso (B) se parte de una tasa de  $20000\text{ s}^{-1}$ . En este caso se analiza un tiempo total correspondiente a 7 periodos de desintegración (12,8 horas). En este caso las mayores desviaciones del periodo son de un  $0,023\text{ }\%$ .



**Figura 5. 8. Periodos de semidesintegración calculados mediante la simulación Monte Carlo de la desintegración de un radionucleido aplicando distintos tiempos muertos. A: Tasa inicial 10000 s<sup>-1</sup> (corresponde a un decaimiento durante un intervalo de tiempo de 6 T<sub>1/2</sub>). B: Tasa inicial 20000 s<sup>-1</sup> (corresponde a un decaimiento durante un intervalo de tiempo de 7 T<sub>1/2</sub>)**

En la figura 5.9 se presentan los residuos, expresados en términos de desviación estándar, obtenidos a partir del ajuste de las curvas de decaimiento aplicando una corrección de tiempo muerto no extensible de  $2\ \mu\text{s}$  y  $20\ \mu\text{s}$ .



**Figura 5. 9. Residuos expresados en términos de la desviación estándar obtenidos a partir del ajuste de las curvas de decaimiento para: (1). Tasas corregidas con tiempo muerto de  $2\ \mu\text{s}$ . (2). Tasas corregidas con tiempo muerto  $20\ \mu\text{s}$**

En general se observa en la figura 5.9 que la distribución de residuos no muestra ninguna estructura con el tiempo: ni oscilatoria ni de aumento o disminución de los residuos con el tiempo. Por otra parte, vemos en la figura que, al aplicar correcciones por tiempo muerto mayores ( $20\ \mu\text{s}$ ), la dispersión de los residuos aumenta ligeramente para las tasas más altas ( $>10000$  sucesos/segundo). Esto se debe a que el porcentaje de sucesos que se desintegran en un intervalo de tiempo menor que el tiempo muerto aplicado es significativamente mayor: Así, por ejemplo, para 20000 sucesos por segundo el porcentaje medio de sucesos que se desintegran con un intervalo de tiempo menor de  $20\ \mu\text{s}$  es de un 40 %.

### 5.2.2.8 Tiempo muerto extensible

Hasta ahora hemos simulado el tiempo muerto del detector como no extensible, y todas las correcciones aplicadas han sido de esta naturaleza. Se ha hecho así porque la forma en la que se realiza la adquisición digital (en el tiempo en el que se conforma el impulso no se procesa ningún otro impulso) nos ha llevado a considerar que la mayor contribución al tiempo muerto es de naturaleza no extensible. Sin embargo, el tiempo muerto total del sistema de adquisición puede tener alguna componente extensible. Para evaluar cual sería el efecto en la tasa corregida al aplicar correcciones por tiempo muerto no extensible a un detector que tiene un tiempo muerto extensible, se ha modificado el fichero de sucesos aplicando un tiempo muerto extensible de  $2\ \mu\text{s}$  a la serie de datos de decaimiento obtenida con el algoritmo de la figura 5.3. A continuación se han impuesto distintos tiempos muertos no extensibles y seguidamente se ha corregido la tasa. En la figura 5.10 se han representado los distintos periodos obtenidos al aplicar las correcciones para diversos tiempos muertos. Como se puede ver, las diferencia mayor encontrada es de un 0,014 %.

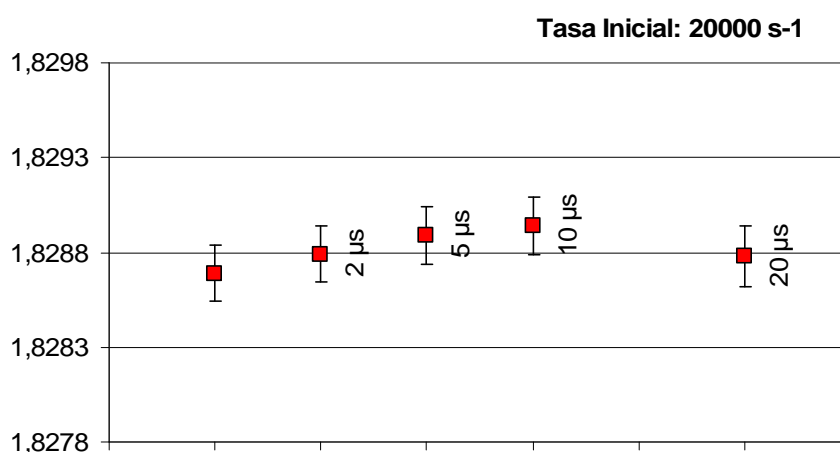


Figura 5. 10. Periodos de semidesintegración calculados mediante la simulación Monte Carlo de la desintegración de un radionucleido aplicando distintos tiempos muertos. A: Tasa inicial  $10000\ \text{s}^{-1}$  (corresponde a un decaimiento durante un intervalo de tiempo de  $6\ T_{1/2}$ )

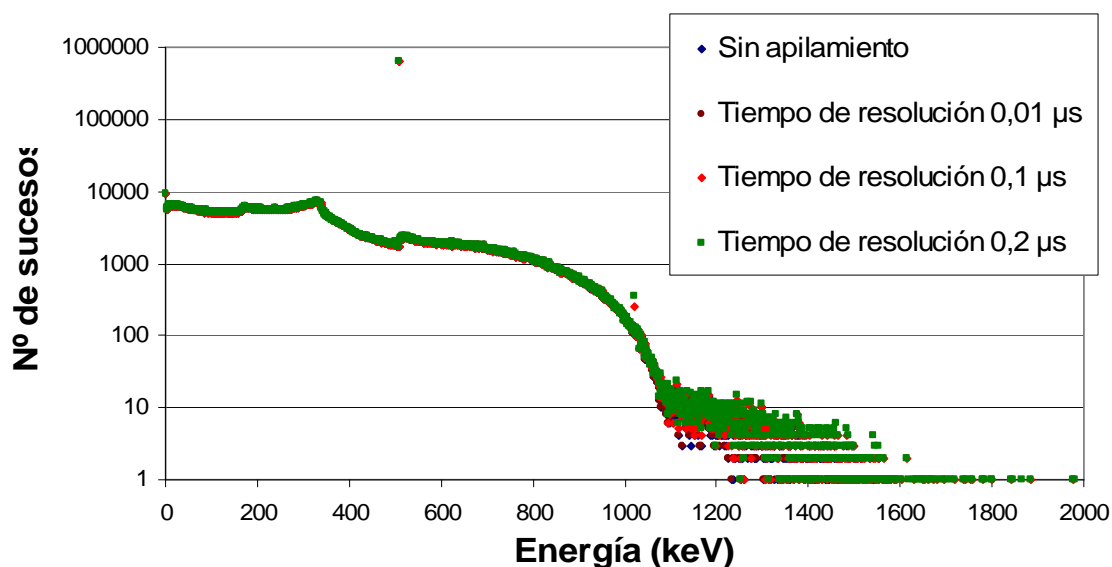
### 5.2.2.9 Apilamiento de Impulsos

Con el objetivo de comprobar el efecto del apilamiento de impulsos en la tasa se ha modificado el fichero generado de acuerdo al esquema de la figura 5.3 según el siguiente procedimiento:

- Se han definido diferentes tiempos de resolución del apilamiento de impulsos,  $\tau_r$ . Si una partícula interacciona con el detector con una diferencia de tiempo respecto a la detección anterior menor que al tiempo de resolución  $\tau_r$  la amplitud en energía del segundo impulso se suma a la amplitud del anterior.
- Se genera un tiempo muerto fijo de 2  $\mu\text{s}$  y se corrige la tasa.
- Se integra el espectro definiendo distintos intervalos de integración y se compara el resultado con la tasa del caso en el que no hay apilamiento de impulsos.

En la figura 5.11 se presenta el espectro de energía depositada obtenido mediante código PENELOPE modificado, para una tasa de  $10000\text{ s}^{-1}$  analizado con un tiempo muerto de 2  $\mu\text{s}$ , sin que haya apilamiento de impulsos y con distintos tiempos de resolución del apilamiento. En el espectro sin apilamientos no aparece ningún pico a la energía de 1022 keV (2 x 511 keV), mientras que conforme aumenta el tiempo de resolución del apilamiento va apareciendo y aumentando la tasa en ese pico.





**Figura 5. 11. Espectro de energía depositada obtenido mediante código PENELOPE modificado, para una tasa de 10000 s<sup>-1</sup> analizado con un tiempo muerto de 2 μs . Sin que haya apilamiento de impulsos y con distintos tiempos de resolución del apilamiento.**

Se ha analizado cuantitativamente este efecto y para ello se ha integrado el espectro desde distintos límites de energía y evaluado la diferencia respecto a un sistema que no tiene apilamiento de impulsos. En la tabla 5.2 se presentan los resultados para distintos tiempos de resolución y diferentes intervalos de integración. El tiempo de resolución mayor considerado es de 0,5 μs debido a que se ha comprobado que la tarjeta de adquisición puede resolver impulsos con esta diferencia de tiempo.

**Tabla 5. 2. Diferencias relativas (%) en el área integrada con distintos límites, y para diferentes tiempos de resolución del apilamiento de impulsos respecto a un detector sin este efecto.**

Intervalo Integración (keV)	Tiempo de resolución del apilamiento (μs)			
	0,01	0,1	0,2	0,5
Total Espectro	0,000	0,000	0,000	0,001
0-1500	0,000	0,001	0,002	0,006
1-1050	0,002	0,013	0,026	0,067
0-550	0,006	0,060	0,119	0,302
500-550	0,006	0,068	0,135	0,347
500-1500	-0,011	-0,106	-0,209	-0,529
100-1500	-0,002	-0,015	-0,030	-0,073

Como era de esperar las diferencias mayores se obtienen con los tiempos de resolución mas altos y cuando se integra el espectro en los alrededores del pico de 511 keV. Sin embargo, si se integra con unos límites lo suficientemente amplios no hay diferencias respecto a un sistema en el que no hubiera apilamientos.

### 5.3. RESULTADOS EXPERIMENTALES

#### 5.3.1. Medida del Periodo del $^{18}\text{F}$

El valor del periodo del  $^{18}\text{F}$  recomendado es 1,8288 (3) [1]. Su valor se basa en la evaluación de 20 medidas experimentales. Los resultados más recientes se obtuvieron mediante la medida de la curva de desintegración por medio de cámaras de ionización gaseosa [110, 119]. En la figura 5.12 se presentan los resultados de las medidas consideradas en la evaluación.

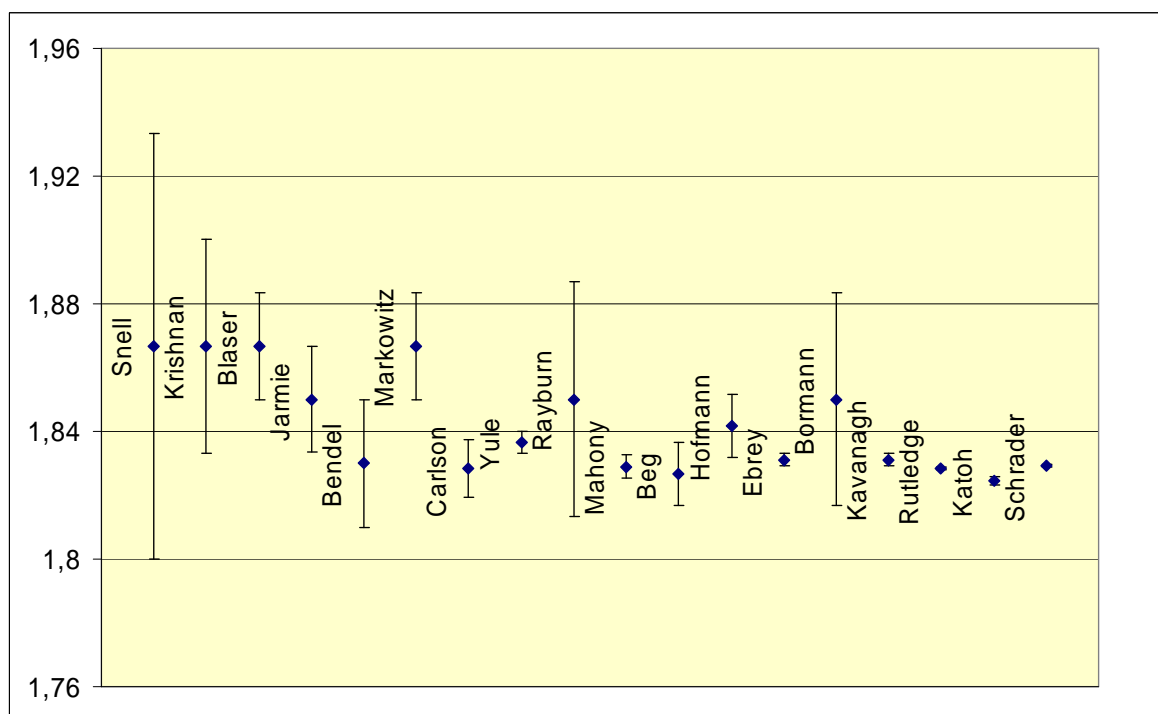
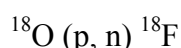


Figura 5. 12. Resultados de las medidas consideradas en la evaluación del periodo de semidesintegración del  $^{18}\text{F}$ .

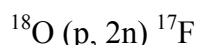
### 5.3.1.1 Preparación de la fuente

Las diferentes medidas se realizó en un periodo de 18 meses, en el cual se midieron distintas soluciones con el objetivo de minimizar posibles efectos sistemáticos debidos a la presencia de contaminantes o impurezas en el material.

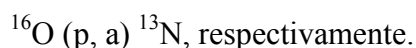
La solución de FDG ( $^{18}\text{F}$ )-fluordesoxiglucosa) se produce en MOLYPHARMA, un centro de producción de radiofármacos próximo al CIEMAT de acuerdo con la reacción nuclear:



Las impurezas más probables que pueden aparecer en la disolución son  $^{17}\text{F}$  y  $^{13}\text{N}$  originadas por las reacciones nucleares:



y



Los periodos de semidesintegración de estos radionucleidos (64,5 s y 9,97 min respectivamente) son, al menos, un orden de magnitud menores que el del  $^{18}\text{F}$ . Por consiguiente, dado el tiempo transcurrido desde la preparación de la muestra y el comienzo de la medida, su presencia no debería suponer ningún problema. Se realizó además una medida del espectro Gamma de la disolución original no mostrándose evidencias de la presencia de ningún contaminante emisor Gamma en cantidades detectables.

Las soluciones de FDG con actividades iniciales de entre 70 y 200 MBq en volúmenes pequeños ( $\sim 0,1$  mL) se recibieron en el laboratorio poco tiempo después de su producción. La disolución original se transfirió a un vial y se diluyó a un volumen de unos pocos mL utilizando para ello una solución de agua destilada. A partir de ella se prepararon fuentes con actividades del orden de MBq para su medida con el detector de Germanio y con en sistema de medida en coincidencia mediante centelladores. Las gotas de la solución activa se depositaron sobre una película de polivinilo de 300  $\mu\text{m}$  de

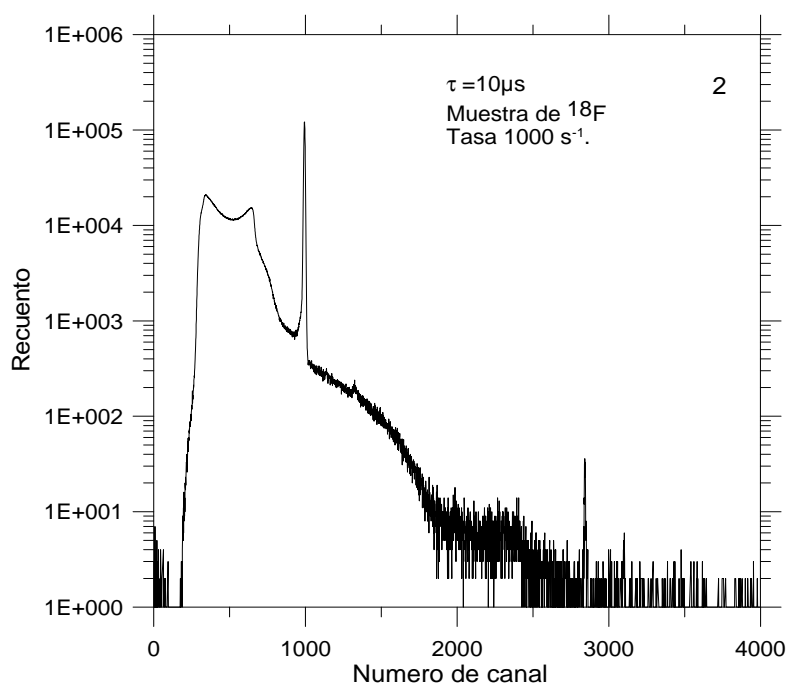
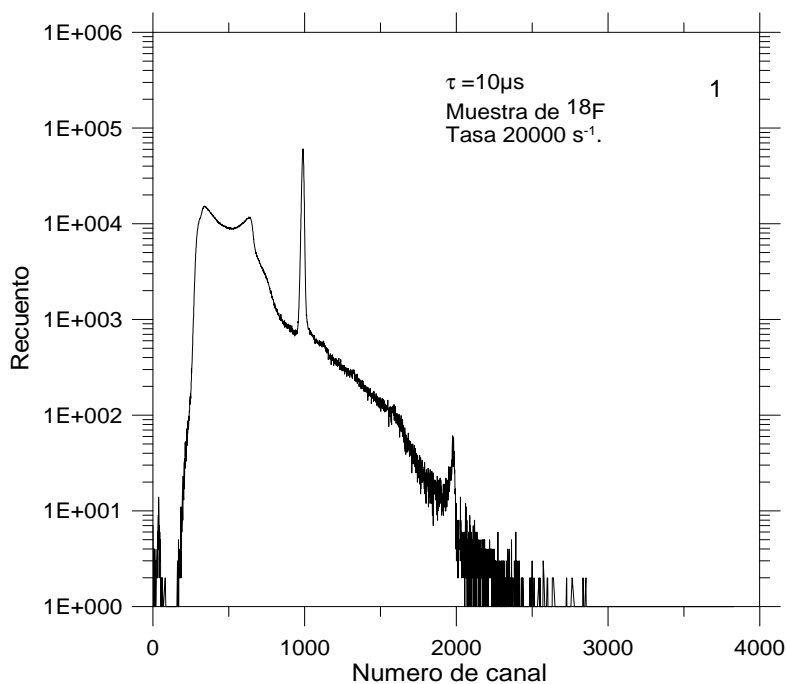
---

espesor. Una vez secas se cubrieron con una película similar y se sellaron térmicamente. El vial con la solución activa restante se encapsuló y se midió en una cámara de ionización del tipo IG-11.

### **5.3.1.2 Medida con el detector de Germanio**

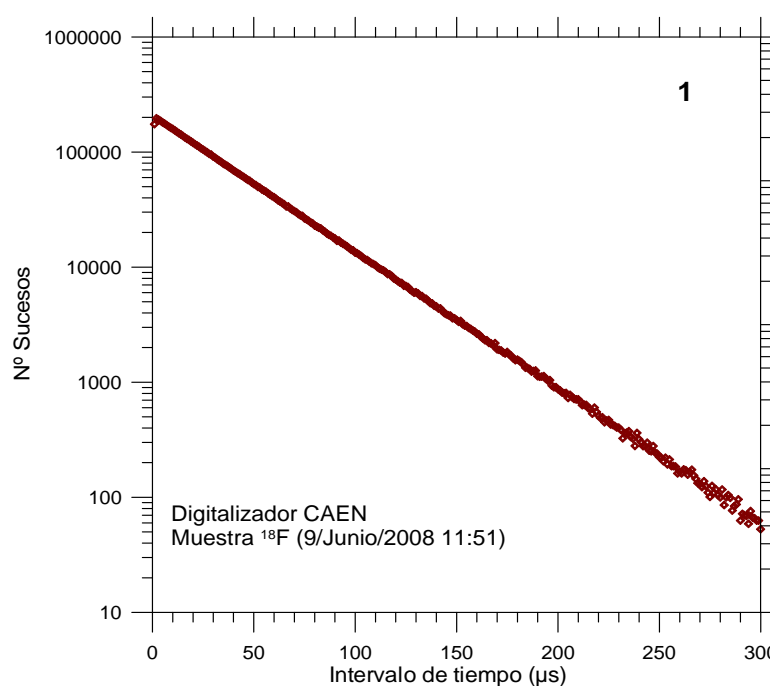
Se realizaron un total de tres medidas con el detector plano y una con el detector coaxial. Cada medida se programó para que durara al menos 6 periodos de semidesintegración, aunque en tres de ellas la duración fue de más de 7 periodos. El número de puntos en la curva de decaimiento estuvo comprendido entre 2200 y 2900 puntos. Cada punto correspondió a la integral del número de impulsos registrados durante 20 segundos en un intervalo de energía de entre aproximadamente 100 y 2000 keV.

Antes de proceder a analizar todos los puntos de la curva de decaimiento se analizó el espectro de energía y el histograma de intervalos de tiempo para asegurar que no hubiera problemas en la adquisición (ruido a baja energía, apilamientos). Así, por ejemplo en la figura 5.13 se presentan los espectros de energía de  $^{18}\text{F}$  obtenidos al comienzo de una medida de la curva con una tasa de  $20000\text{ s}^{-1}$  y a una tasa posterior de  $1000\text{ s}^{-1}$ . Se puede ver que, con la tasa de  $20000\text{ s}^{-1}$ , la presencia de apilamientos es importante (pico de 1022 keV).

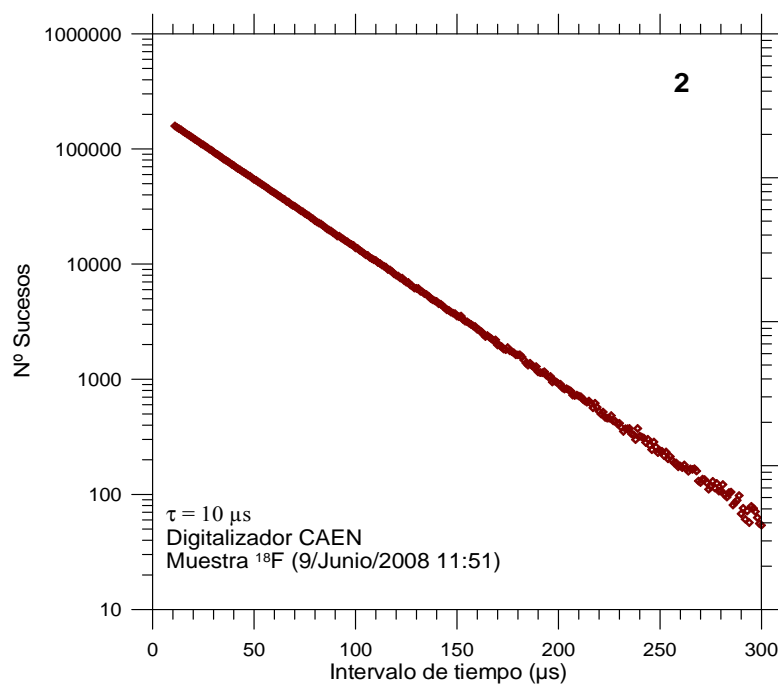


**Figura 5. 13. Espectro de la distribución de energía depositada en el detector obtenido con el sistema de adquisición digital de una muestra de  $^{18}\text{F}$ . 1) Tasa de  $20000 \text{ s}^{-1}$ . 2) Tasa de  $1000 \text{ s}^{-1}$ .**

En las figuras 5.14 y 5.15 se presenta la distribución de intervalos de tiempo con el equipo experimental utilizado para la tasa máxima detectada ( $20000\text{ s}^{-1}$ ) sin aplicar tiempo muerto y después de aplicar un tiempo muerto no extensible de  $10\text{ }\mu\text{s}$ . Tal y como se espera, la distribución de intervalos de tiempo tiene una forma exponencial excepto para intervalos menores de  $2\text{ }\mu\text{s}$ . Como ya se ha mencionado, el impulso se ha conformado para que el tiempo muerto total del detector sea siempre menor de  $2\text{ }\mu\text{s}$ , por lo que por debajo de ese valor ya no sigue esa tendencia debido a las pérdidas de impulsos que se producen en el tiempo de procesamiento, además de las pérdidas que se producen por apilamiento.



**Figura 5. 14. Distribución experimental de intervalos de tiempo obtenida en la medida de una muestra de  $^{18}\text{F}$  con un detector de Germanio para una tasa de 20000 sucesos/segundo sin corregir por tiempo muerto.**



**Figura 5. 15. Distribución experimental de intervalos de tiempo obtenida en la medida de una muestra de  $^{18}F$  con un detector de Germanio para una tasa de 20000 sucesos/segundo, corregida con un tiempo muerto no extensible de 10  $\mu s$ .**

En las figuras 5.16 y 5.17 se presentan las curvas de decaimiento junto con los residuos expresados en términos de la desviación estándar tanto para una de las medidas realizadas con el detector de Germanio plano como para la medida realizada con el detector Coaxial respectivamente. En las mismas se observa que no hay evidencias de estructuras sin ajustar u otros efectos sistemáticos.

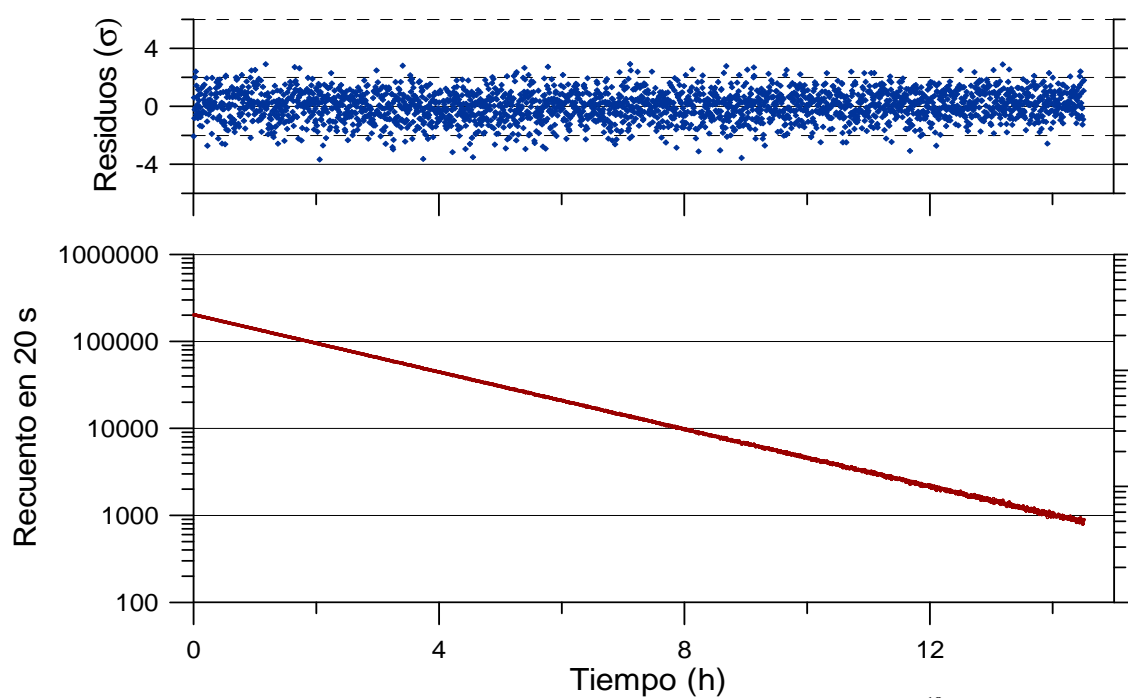


Figura 5. 16. Resultado del ajuste de una de las curvas de decaimiento del  $^{18}\text{F}$  medidos con el detector de Germanio Plano.

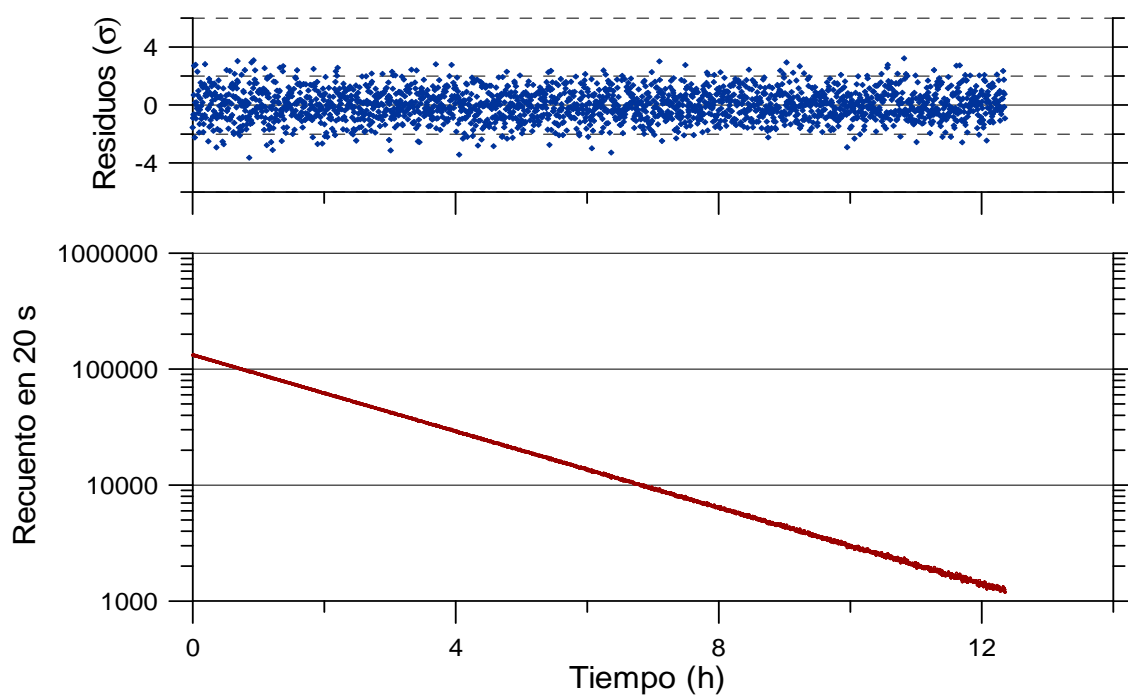


Figura 5. 17. Resultado del ajuste de la curva de decaimiento del  $^{18}\text{F}$  medido con el detector de Germanio coaxial.

En la tabla 5.3 se presenta un resumen de los resultados obtenidos con todas las medidas. El valor medio de las cuatro medidas ha sido 1,82867 (35).



**Tabla 5.3. Resultados experimentales obtenidos de la medida del Periodo del  $^{18}\text{F}$  con detectores de Germanio**

<b>Detector</b>	<b><math>T_{1/2}</math> (h)</b>	<b>Nº de puntos en la curva de decaimiento</b>	<b>Nº de <math>T_{1/2}</math> estudiados</b>
Plano	1,82861 (46)	2500	7,9
Plano	1,82889 (46)	2900	8,8
Plano	1,82875 (46)	2300	7,0
Coaxial	1,82852 (36)	2200	6,7
<b>Valor medio</b>	<b>1,82867 (35)</b>		

Las principales contribuciones a la incertidumbre total del resultado se presentan en la tabla 5.4. Éstas son:

- Incertidumbre en el fondo. Se debe a variaciones en el valor del fondo durante el periodo de medida. Su contribución a la incertidumbre total del periodo es mayor cuando el fondo tiene un valor medio alto, y por tanto representa una mayor contribución a la tasa medida en las últimas etapas de la curva de decaimiento. Debido a esto, la incertidumbre del fondo contribuye en mayor medida que en el caso del detector plano.
- Tiempo muerto. La contribución total del tiempo muerto se ha evaluado calculando el periodo con distintos tiempos muertos desde: 10  $\mu\text{s}$  hasta 40  $\mu\text{s}$ .
- Impureza radiactiva. Después de la medida del periodo se ha realizado un espectro gamma de la disolución original no mostrándose evidencias de contaminación en cantidades detectables.
- Tiempo. La base de tiempos utilizada tiene una resolución de 10 ns (la frecuencia de muestreo es de 100 MHz). Su precisión se ha comprobado mediante un generador de frecuencias de Rubidio.
- Estabilidad del sistema. Para la medida de la estabilidad se ha adquirido un espectro en condiciones similares a la medida de la curva de decaimiento

con un radionucleido de periodo largo (una fuente de  $^{85}\text{Sr}$ ) y se han observado las variaciones en el tiempo.

- La componente estadística de incertidumbre del ajuste se ha obtenido a partir del elemento correspondiente de la matriz de covarianzas del ajuste y el valor de la  $\chi^2$  reducida, de acuerdo con lo indicado en [74].

En principio, cabría esperar obtener mejores resultados con el detector de menor tamaño, es decir, con el detector plano, debido a que se necesitan tiempos de conformación de impulsos sensiblemente menores. Sin embargo, los resultados indican que esta ventaja teórica está contrarrestada por un valor de la tasa de fondo mayor y menos reproducible. La tabla de incertidumbres presentada en la tabla 5.4 refleja este hecho. La componente de la incertidumbre debida al fondo y la incertidumbre del ajuste son mayores para el modelo plano.

**Tabla 5. 4. Componentes fundamentales de la incertidumbre en la estimación del periodo con detectores de Germanio.**

Componente de la incertidumbre	Tipo	Incertidumbre relativa (k=1) %	
		Germanio Plano	Germanio Coaxial
Fondo	B	0,012	0,006
Tiempo muerto	B	0,008	0,004
Impureza radiactiva	B	< 0,001	< 0,001
Medida de tiempo	B	< 0,001	< 0,001
Estabilidad del sistema (detector y electrónica)	B	0,008	0,008
Componente estadística e incertidumbre del ajuste	A	0,022	0,015
<b>Incertidumbre combinada</b>		<b>0,025</b>	<b>0,020</b>

### 5.3.1.3 Comparación con otras medidas experimentales

Los valores obtenidos deben compararse con los valores previamente existentes y con los obtenidos en el CIEMAT con otros dos sistemas: una cámara de ionización y un sistema formado por dos centelladores rápidos operando en coincidencia.

#### **Medida con una cámara de ionización**

La base del funcionamiento de las cámaras de ionización y su aplicación a la medida de la actividad de fuentes radiactivas ha sido discutida por Schrader [120] así como los problemas específicos para la determinación de periodos de semidesintegración [110].

Las medidas realizadas en el CIEMAT se han realizado con una cámara de ionización de CENTRONIC<sup>TM</sup> (modelo IG11), una fuente de alimentación de alto voltaje BERTAN<sup>TM</sup> y un electrómetro KEITHLEY<sup>TM</sup> (modelo 6514). El sistema es trazable directamente al sistema internacional de referencia (SIR) del BIPM [121]. Cada medida comienza, tal y como se detalla en [122] registrando la corriente de fondo durante las 12 h previas a la medida de la fuente radiactiva. A continuación, comienza la medida de una serie de puntos experimentales, realizada a una tasa de 1 min<sup>-1</sup>. Cada punto representa la media de 50 lecturas de corriente en el electrómetro. El tiempo total de medida de cada serie es del orden de 15 h y la curva de decaimiento contiene del orden de 900 puntos. Los datos se ajustaron con el mismo procedimiento y programa descrito en la sección anterior.

Con este sistema se han realizado un total de 4 medidas independientes del periodo. La tabla 5.5 presenta los resultados obtenidos por esta técnica. El valor medio resultante es de  $T_{1/2}=1,82872 (23) h$ .

**Tabla 5. 5. Valor evaluado, resultados obtenidos en el CIEMAT y valor final del periodo del  $^{18}\text{F}$ .**

<b>Técnica de Medida</b>	<b><math>T_{1/2}</math> (h)</b>	<b>Nº puntos en la curva de decaimiento</b>	<b>Nº de <math>T_{1/2}</math> medidos</b>
Evaluación [1]	<b>1,8288 (3)</b>		
CIEMAT			
Cámara de ionización	1,82866 (30)	220 (x50 lecturas)	4,6
Cámara de ionización	1,82844 (22)	900 (x50 lecturas)	8
Cámara de ionización	1,82888 (22)	900 (x50 lecturas)	8
Cámara de ionización	1,82890 (22)	900 (x50 lecturas)	8
<b>Media Cámara de ionización</b>	<b>1,82872 (23)</b>		
CIEMAT			
Ge Plano	1,82861 (46)	2500 (x 20 s)	7,9
Ge Plano	1,82889 (46)	2900 (x 20 s)	8,8
Ge Plano	1,82875 (46)	2300 (x 20 s)	7,0
Ge Coaxial	1,82852 (36)	2216 (x 20 s)	6,7
<b>Media Detectores Ge</b>	<b>1,82867 (35)</b>		
CIEMAT			
<b>Sistema de coincidencias</b>	<b>1,82876 (74)</b>	2300 (x 20 s)	7
<b>Valor Final</b>	<b>1,82871 (18)</b>		

### **Medida con un sistema de centelladores rápidos**

El sistema de coincidencias está formado por dos cilindros de centelleo plástico de 25 mm de diámetro y 60 mm de altura cada uno, utilizados para la detección de fotones. Los detectores están ópticamente acoplados a dos tubos fotomultiplicadores. La muestra de  $^{18}\text{F}$  se sitúa entre ellos cubierta por ambos lados por un disco de Aluminio con objeto de que la aniquilación de los positrones emitidos por la fuente tenga lugar en la vecindad del punto de emisión. El sistema se completa con dos amplificadores rápidos modelo 2111 de CANBERRA<sup>TM</sup>, dos unidades discriminadoras modelo 821 de Lecroy y una unidad de coincidencias rápida modelo 622 de Lecroy. Los impulsos de

coincidencia se registran en intervalos de 20 s mediante una tarjeta multiescala (MCS) modelo MCS-pci de ORTEC<sup>TM</sup>.

La muestra fue medida durante más de 12 h con una tasa inicial de  $3 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$ . Los datos de decaimiento se corrigieron por tiempo muerto, coincidencias accidentales y fondo y el procedimiento de ajuste fue similar al explicado anteriormente. La tabla 5.5 presenta los resultados obtenidos.

### Periodo de $^{18}\text{F}$ resultante

Los resultados obtenidos se presentan en la tabla 5.5, incluyendo tanto el valor de la evaluación más reciente [1] como los resultados obtenidos con las medidas realizadas con detectores de Germanio. Los resultados se pueden agrupar en función de la técnica utilizada en tres grupos. Cada grupo está caracterizado por un valor medio,  $\bar{T}_i$ , y una incertidumbre combinada  $u_{ci}$ .

La serie de 9 medidas del periodo del  $^{18}\text{F}$  realizadas por tres técnicas distintas han producido una serie de resultados consistentes. En particular se observa que los resultados obtenidos con detectores de Germanio son comparables a los obtenidos con cámaras de ionización. Además, los valores del periodo obtenidos por las tres técnicas utilizadas en el CIEMAT son compatibles con los de la evaluación, considerando las incertidumbres experimentales.

El valor medio y la varianza se obtienen de las expresiones [123]:

$$T = \frac{\sum_{i=1}^3 \frac{\bar{T}_i}{u_{ci}^2}}{\sum_{i=1}^3 \frac{1}{u_{ci}^2}}$$

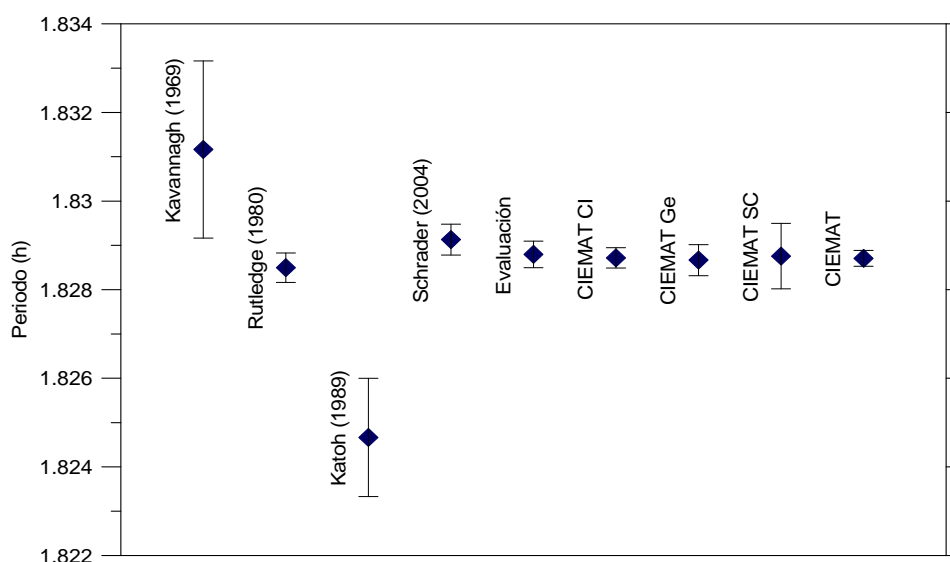
y

$$u_c^2 = \frac{1}{\sum_{i=1}^3 \frac{1}{u_{ci}^2}}$$

donde el índice  $i$  se refiere a la técnica de medida.

El resultado final obtenido para el periodo del  $^{18}\text{F}$  es de 1,82872(18) h.

En la figura 5.18 se han representado las medidas más recientes del periodo del  $^{18}\text{F}$  juntos con los resultados del CIEMAT. En la misma se puede ver que los resultados del CIEMAT son compatibles, considerando las incertidumbres experimentales, con la medida más reciente de 2004 [110] realizada con una cámara de ionización. El nuevo valor deducido al combinar las distintas técnicas (cada una con distintas componentes de la incertidumbre de tipo B) tiene una incertidumbre menor que los anteriormente referenciados.



**Figura 5. 18. Resultados de las medidas de periodo del  $^{18}\text{F}$  más recientes junto con los resultados obtenidos en el CIEMAT.**

### 5.3.2. Medida del Periodo del $^{13}\text{N}$

Una vez validado el método de la medida del periodo mediante detectores de Germanio con adquisición digital para el radionucleido  $^{18}\text{F}$ , se decidió probar su aplicabilidad a radionucleidos de vida más corta. Se seleccionó el  $^{13}\text{N}$  ya que es otro de los emisores de positrones utilizados en PET, en la forma química  $[^{13}\text{N}]\text{NH}_3$  solución de Amonio) o  $[^{13}\text{N}]$ - amino ácidos [59], y además, se podía disponer del mismo en el laboratorio del CIEMAT muy poco tiempo después de su producción.

El valor del periodo del  $^{13}\text{N}$  recomendado es 9,9670 min con una incertidumbre de 0,0037 min [1]. El valor recomendado se basa en 15 valores consistentes estadísticamente. En la figura 5.19 se presentan los resultados de las medidas consideradas en la evaluación.

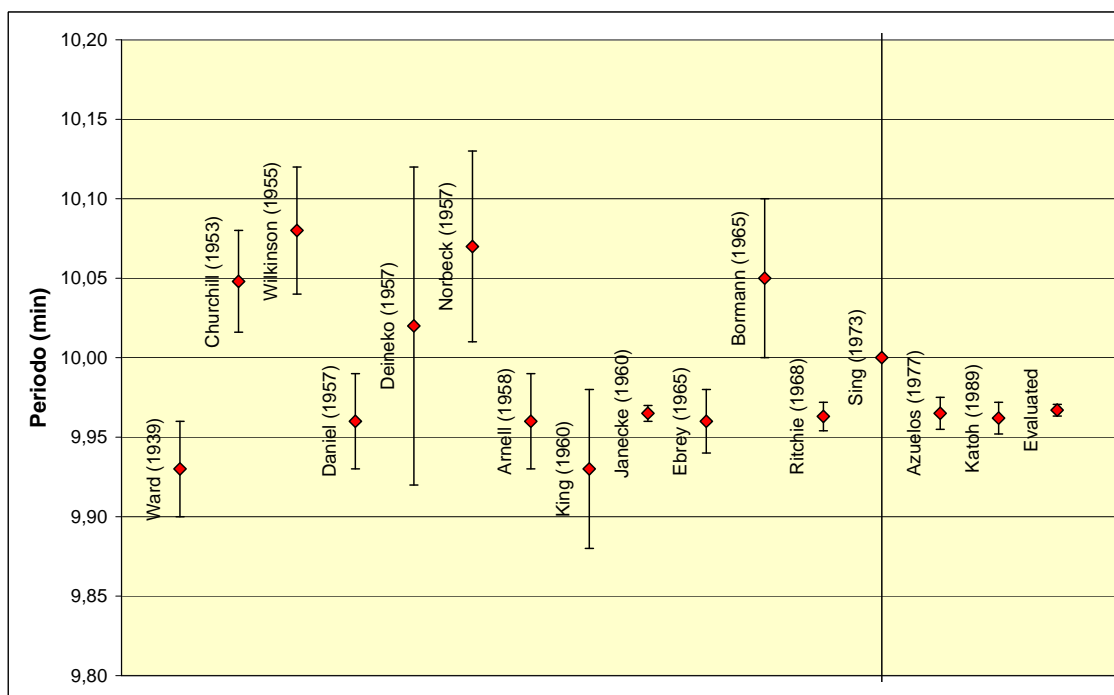
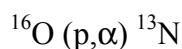


Figura 5. 19. Resultados de las medidas consideradas en la evaluación del periodo de semidesintegración del  $^{13}\text{N}$ .

### 5.3.2.1 Preparación de la fuente

La solución de Amonio se produce en el centro de producción de radiofármacos mencionado anteriormente según la reacción nuclear:



El radionucleido no se produce comercialmente en este centro, por ello, el  $^{13}\text{N}$  presenta una contaminación importante de  $^{18}\text{F}$ , que tiene un periodo mucho mayor que el del  $^{13}\text{N}$  (11 veces mayor), lo que significa que la concentración del contaminante aumenta con el tiempo. El corto periodo del  $^{13}\text{N}$  no permite la adquisición en centros alejados de las instalaciones donde se vayan a realizar las medidas, por lo que no se ha

podido seleccionar otro centro de producción. Este hecho complica enormemente una medida ya de por sí difícil dado el corto periodo de  $^{13}\text{N}$ , pero permite hacer una primera estimación del periodo y probar la consistencia del método para el cálculo de periodos de semidesintegración muy cortos.

Para ello se han realizado dos medidas. En cada caso, la solución original de Amonio-1 con actividades iniciales de 500 MBq en un volumen pequeño (~3 mL) se recibió en el laboratorio 10 minutos aproximadamente después de su producción. La disolución original se transfirió parcialmente a un vial y el resto se diluyó a un volumen de unos pocos mL utilizando para ello agua destilada, con el objeto de preparar fuentes puntuales para la medida en el detector de Germanio y realizar una calibración en actividad, así como una estimación de las impurezas presentes en la disolución original.

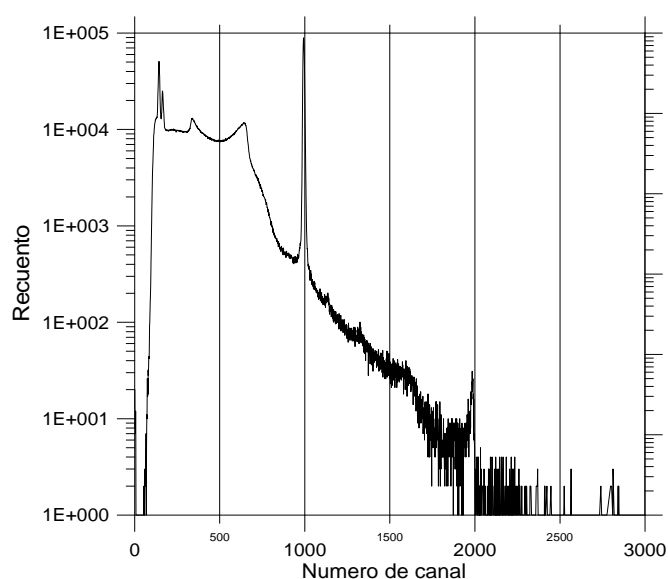
#### **5.3.2.2 Primera medida con el detector de Germanio**

El dispositivo experimental fue el mismo descrito anteriormente, aunque se añadió un blindaje adicional mediante bloques de plomo de 5 cm x 5 cm x 10 cm con objeto de disminuir el fondo.

La primera medida se programó para que durara al menos 6 periodos de  $^{13}\text{N}$ . Sin embargo, la concentración de  $^{18}\text{F}$  era tan alta que al cabo de 3 periodos era significativamente mayor que la de  $^{13}\text{N}$  y, aunque se continuó la adquisición de datos, a partir de ese momento no se utilizaron para el cálculo del periodo. Para cada punto de medida, el área se integró en tiempos de 2 segundos y en un intervalo de energía de entre aproximadamente 200 y 2000 keV. La tasa de fondo en esa ventana fue de  $3,6 \text{ s}^{-1}$ .

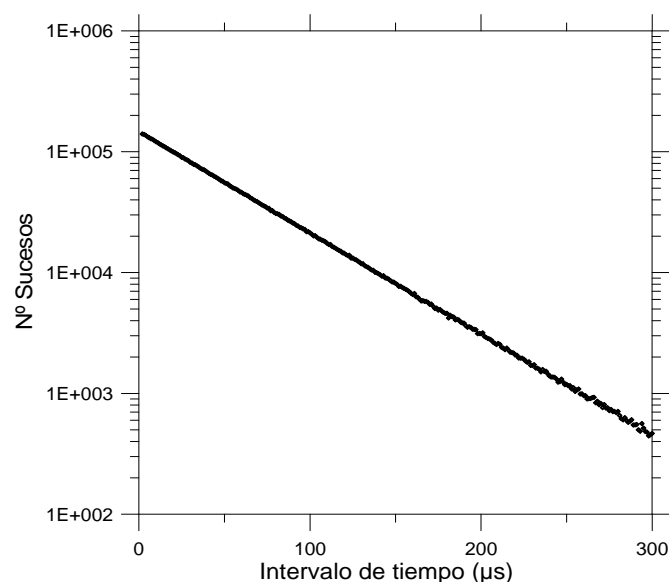
La tasa inicial fue de  $20000 \text{ s}^{-1}$ , aunque una parte importante de ella se debió a la contribución del  $^{18}\text{F}$ . En la figura 5.20 se presenta el espectro de energía obtenido al principio de la medida. En la misma se puede apreciar el pico de aniquilación en el canal 1000 aproximadamente, la presencia de apilamientos en el canal 2000 y los rayos X característicos del plomo en el canal 150 que han aumentado en importancia al ser mayor el blindaje y finalmente, el pico de retrodispersión en el canal 350 aproximadamente.





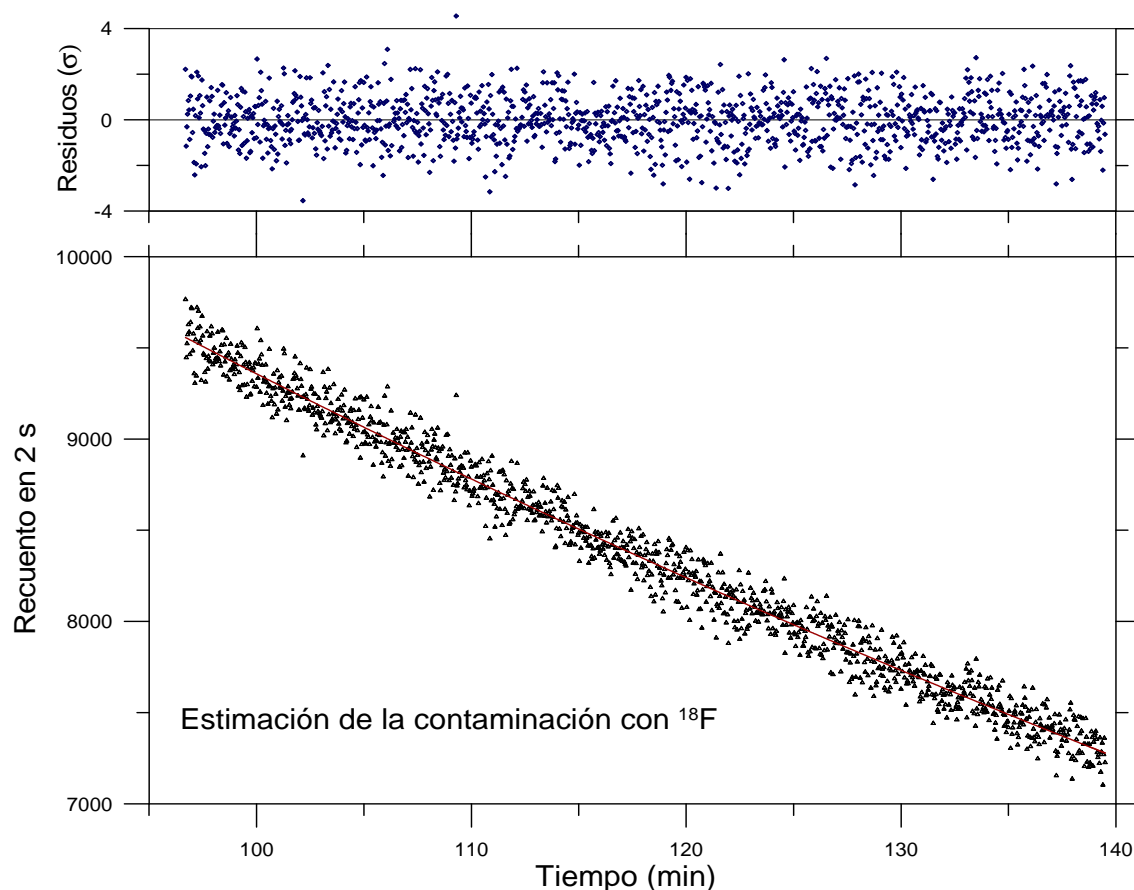
**Figura 5. 20.** Espectro de la distribución de energía depositada en el detector de Ge plano obtenido con el sistema de adquisición digital de una muestra de  $^{13}\text{N}$ . Tasa  $20000\text{ s}^{-1}$ .

En la figura 5.21 se presenta la distribución de intervalos de tiempo para la misma tasa aplicando un tiempo muerto no extensible de  $1\text{ }\mu\text{s}$ .



**Figura 5. 21.** Distribución experimental de intervalos de tiempo obtenida en la medida de una muestra de  $^{13}\text{N}$  con un detector de Ge para una tasa de  $20000\text{ s}^{-1}$ . tiempo muerto no extensible de  $1\text{ }\mu\text{s}$ .

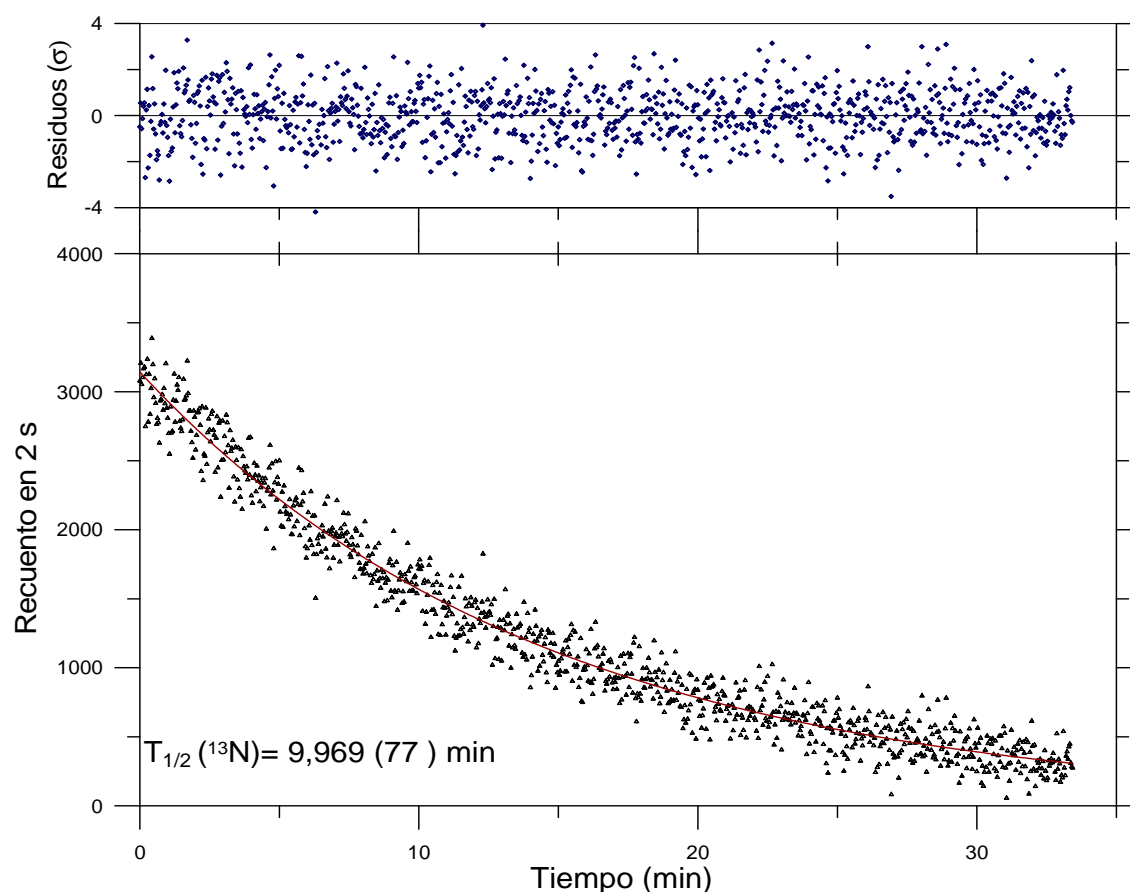
La estimación de la contaminación por  $^{18}\text{F}$  se realiza con los datos obtenidos al final del periodo de medida, cuando ha transcurrido un tiempo equivalente a 10 periodos de  $^{13}\text{N}$ ; es decir, cuando la actividad de este último es 1000 veces menor que al principio de la medida. En ese mismo intervalo de tiempo, la actividad de  $^{18}\text{F}$  es tan solo 1,8 veces menor. A partir del ajuste de la curva de decaimiento que se presenta la figura 5.22, con el método ya explicado anteriormente, se obtiene la concentración de  $^{18}\text{F}$  al principio del periodo de medida. En la curva se han representado también los residuos obtenidos del ajuste expresados en términos de la desviación estándar. No se observan estructuras sin ajustar u otros efectos sistemáticos.



**Figura 5. 22.** Curva de decaimiento de  $^{18}\text{F}$  medido con el detector de Ge plano transcurrido un tiempo equivalente de 10 periodos del  $^{13}\text{N}$  desde el comienzo de la medida.

La contribución a la tasa del  $^{13}\text{N}$  se obtiene restando la contribución de  $^{18}\text{F}$  a la tasa total corregida por tiempo muerto y decaimiento durante la medida. En la figura 5.23 se presenta la curva de decaimiento del  $^{13}\text{N}$  generada por este procedimiento. La

relación de  $^{18}\text{F}/^{13}\text{N}$  estimada ha sido de 4,6 al principio del periodo de medida y de 47,7 al final de la curva de decaimiento. El valor del periodo obtenido ha sido de 9,969 (85) minutos. Este resultado es plenamente concordante con el resultado de la evaluación aunque con una alta incertidumbre.



**Figura 5. 23.** Resultados del ajuste de la curva de decaimiento del  $^{13}\text{N}$  medido con el detector de Germanio plano. Se ha restado la contribución al recuento debida a la impureza de  $^{18}\text{F}$ .

Las principales contribuciones a la incertidumbre se presentan en la tabla 5.6; se han obtenido de forma similar al caso del  $^{18}\text{F}$ . La mayor contribución se debe a la presencia de la impureza de  $^{18}\text{F}$  así como a una mayor incertidumbre del ajuste.

**Tabla 5. 6. Componentes fundamentales de la incertidumbre en la estimación del periodo con detectores de Germanio.**

<b>Componente de la incertidumbre</b>	<b>Tipo</b>	<b>Incertidumbre relativa (k=1) %</b>
Fondo	B	0,012
Tiempo muerto	B	0,008
Impureza radiactiva	B	0,3
Medida de tiempo	B	< 0,001
Estabilidad del sistema (detector y electrónica)	B	0,008
Componente estadística e incertidumbre del ajuste	A	0,77
<b>Incertidumbre combinada</b>		<b>0,85</b>

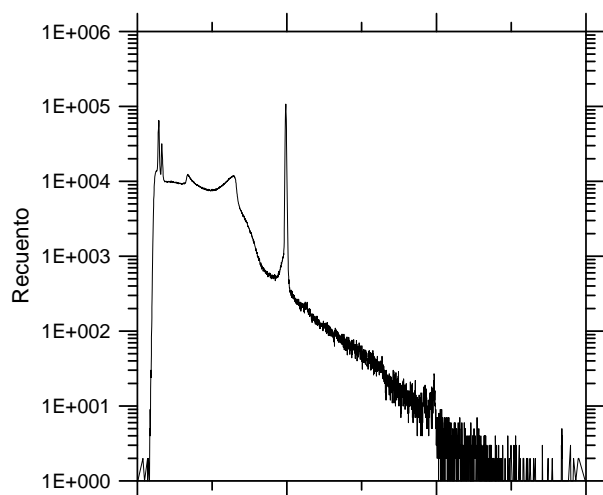
### 5.3.2.3 Segunda medida con el detector de Germanio

A la vista de los resultados obtenidos en la primera medida del periodo del  $^{13}\text{N}$  con el detector de Germanio se decidió repetir la medida modificando el protocolo experimental ligeramente para que al comienzo del registro de datos la relación de actividades entre  $^{13}\text{N}$  y  $^{18}\text{F}$  fuera sensiblemente mayor. Se amplió también el intervalo de tiempo total de registro: de 140 minutos se pasó a medir un tiempo total de 500 minutos. Con estas medidas se ha pretendido disminuir la componente estadística de la incertidumbre del ajuste, así como la incertidumbre en la estimación de la contaminación por  $^{18}\text{F}$ .

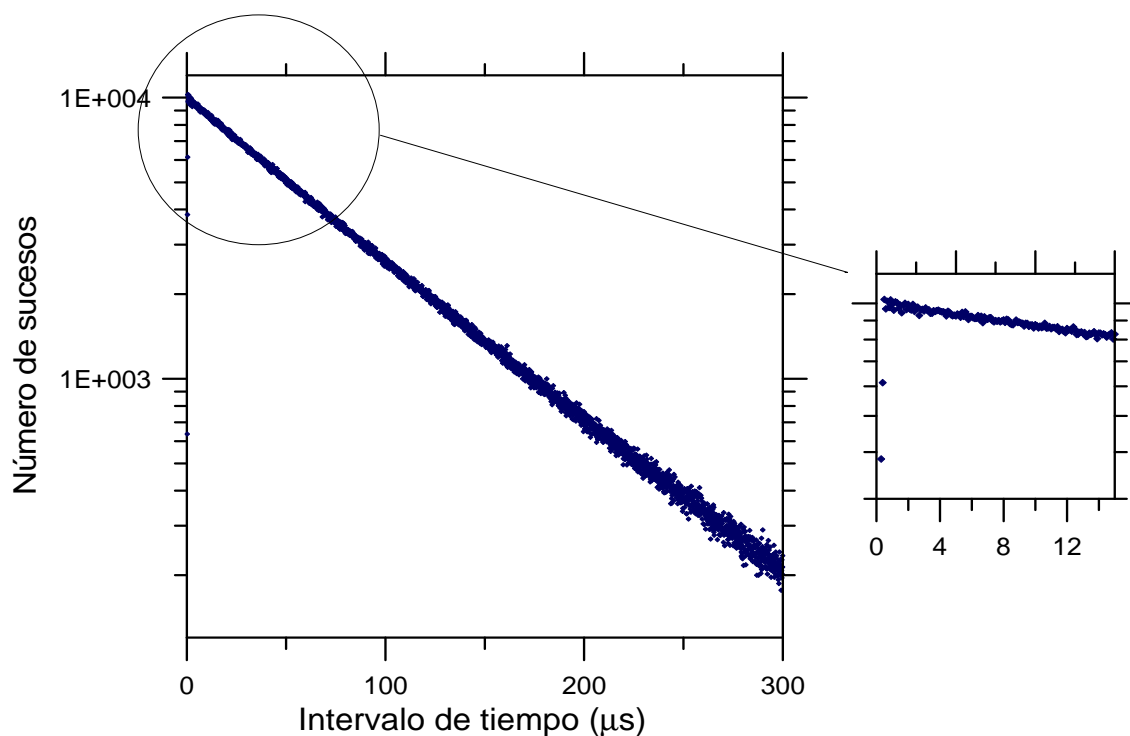
El área se integró en un tiempo de 4 segundos en un intervalo de energía de entre aproximadamente 100 y 2000 keV. La tasa de fondo en esa ventana fue de  $4,5 \text{ s}^{-1}$ .

La tasa inicial fue de  $13000 \text{ s}^{-1}$ . En la figura 5.24 se presenta el espectro de energía obtenido al principio de la medida. Como se puede ver en la misma, las componentes del espectro son similares a las obtenidas en la primera prueba. En la figura 5.25 se ha representado la distribución de intervalos de tiempo obtenida para esta tasa aplicando un tiempo muerto de  $0,1 \text{ } \mu\text{s}$ . Esta distribución tiene una forma exponencial incluso por debajo de  $2 \text{ } \mu\text{s}$ . El análisis de los datos se ha realizado

aplicando dos tiempos muertos 2 y 10  $\mu\text{s}$  con objeto de poder realizar una estimación precisa de la incertidumbre debida al tiempo muerto aplicado.



**Figura 5. 24.** Espectro de la distribución de energía depositada en el detector de Ge plano obtenido en la segunda medida realizada de una muestra de  $^{13}\text{N}$ . Tasa  $13000\text{ s}^{-1}$ .



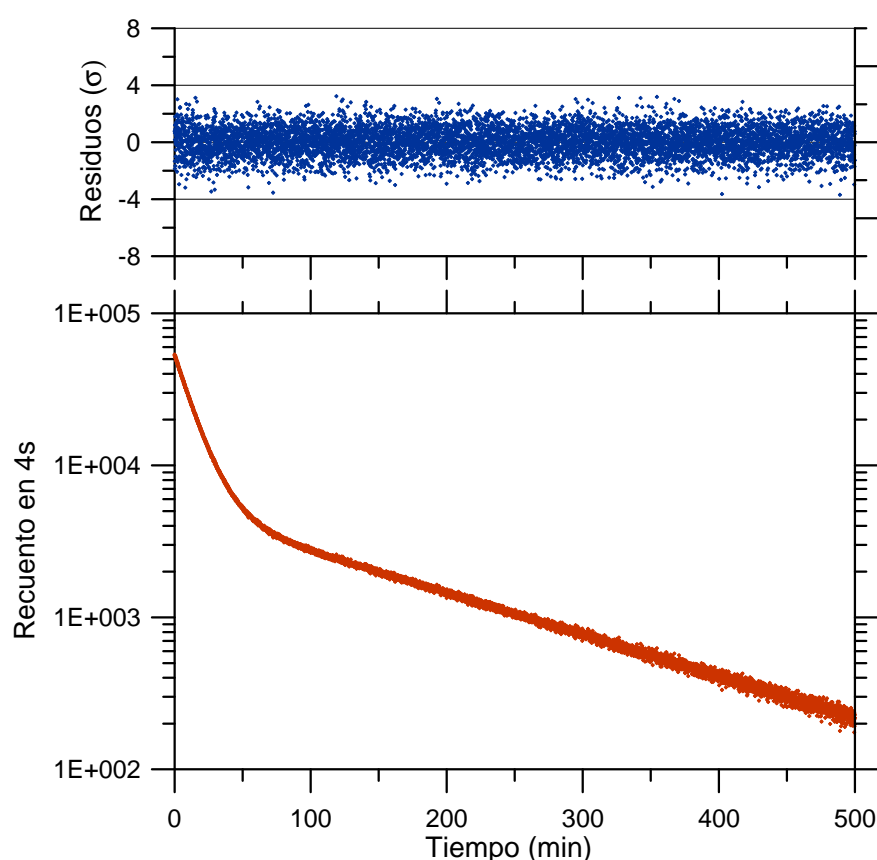
**Figura 5. 25.** Distribución experimental de intervalos de tiempo obtenida de la medida de la segunda muestra de  $^{13}\text{N}$ . La tasa detectada es de  $13000\text{ s}^{-1}$ .

El periodo del  $^{13}\text{N}$  se ha obtenido mediante el ajuste de los datos a la expresión:

$$Area = C_{13N} e^{-\frac{\ln(2)t}{T_{13N}}} + C_{18F} e^{-\frac{\ln(2)t}{T_{18F}}}$$

donde el *Area* se refiere al numero de sucesos detectados en un tiempo  $t$  desde el comienzo de la medida, integrados durante 4 s, con una energía dentro de los límites mencionados anteriormente, y aplicando la corrección por tiempo muerto apropiada;  $C_{13N}$  es la concentración de  $^{13}\text{N}$  para  $t=0$ ;  $C_{18F}$  es la concentración de  $^{18}\text{F}$  para  $t=0$ ;  $T_{13N}$  es el periodo del  $^{13}\text{N}$ ; finalmente,  $T_{18F}$  es el periodo del  $^{18}\text{F}$ . A partir del procedimiento de ajuste mencionado anteriormente se obtienen los valores de  $C_{13N}$ ,  $C_{18F}$  y  $T_{13N}$  que mejor ajustan la expresión del *Area*.

En la figura 5.26 se ha representado la curva de decaimiento medida, así como los residuos obtenidos del ajuste expresados en términos de la desviación estándar. Como en casos anteriores, no se aprecian estructuras sin ajustar u otros efectos sistemáticos.



**Figura 5. 26. Resultado del ajuste de la curva de decaimiento del  $^{13}\text{N}$  y su contaminante  $^{18}\text{F}$  medida con el detector de Germanio plano.**

El valor del periodo obtenido ha sido de 9,9715 (82) minutos. La fracción de  $^{18}\text{F}$  a comienzo de la medida ha sido de 0,1059 (2).

En la tabla 5.7 se presentan el resumen de los resultados obtenidos en las dos medidas realizadas con el detector de Germanio.

**Tabla 5. 7. Principales resultados obtenidos en la medida del periodo del  $^{13}\text{N}$  con detectores de Germanio.**

<b>Técnica</b>	<b><math>T_{1/2}</math> (min)</b>	<b>Nº de puntos en la curva de decaimiento</b>	<b>Nº de <math>T_{1/2}</math> medidos</b>	<b>Fracción de <math>^{18}\text{F}</math> frente a <math>^{13}\text{N}</math> a <math>t = 0</math></b>
Evaluación [1]	9,9670 (37)			
Ge Plano Medida 1	9,969 (85)	1000 (x 2s)	3,35	4,6 (2)
Ge Plano Medida 2	9,9715 (82)	7500 (x 4s)	50	0,1059 (4)

Las principales contribuciones a la incertidumbre se han calculado de forma similar al caso del  $^{18}\text{F}$ . En la tabla 5.8 se presentan los valores obtenidos.

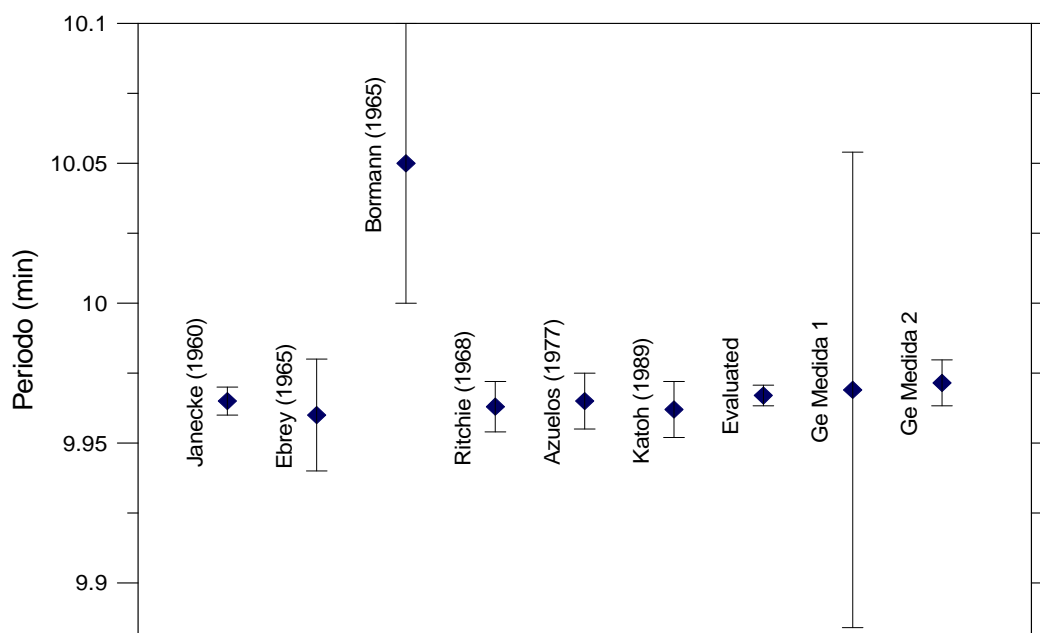
**Tabla 5. 8. Componentes fundamentales de la incertidumbre en la estimación del periodo del  $^{13}\text{N}$  realizado con la segunda muestra preparada para la medida con detector de Germanio.**

<b>Componente de la incertidumbre</b>	<b>Tipo</b>	<b>Incertidumbre relativa (k=1) %</b>
Fondo	B	0,0026
Tiempo muerto	B	0,0014
Impureza radiactiva	B	0,082
Medida de tiempo	B	< 0,001
Estabilidad del sistema (detector y electrónica)	B	0,001
Periodo de $^{18}\text{F}$	B	0,0046
Componente estadística e incertidumbre del ajuste	A	0,0047
<b>Incertidumbre combinada</b>		<b>0,082</b>

Como se puede apreciar observando los resultados presentados en la tabla 5.8, en esta medida han disminuido significativamente los valores de las principales contribuciones a la incertidumbre, fundamentalmente la contribución debida a la componente estadística y la incertidumbre del ajuste y por la presencia de una impureza radiactiva. Esta última sigue siendo la mayor contribución a la incertidumbre total. Se ha mejorado también significativamente la contribución de la incertidumbre debida al fondo radiactivo al haber aumentando el blindaje del detector y disminuido de esta forma su valor.

#### 5.3.2.4 Comparación con otras medidas experimentales

En la figura 5.27 se han representado los valores del periodo obtenidos con el detector de Germanio junto con el valor de la evaluación y los resultados experimentales más recientes [1]. No se ha representado el valor del periodo obtenido por Sing en 1973 por tener una incertidumbre muy superior al resto de resultados.



**Figura 5. 27. Resultados de las medidas de periodo del  $^{13}\text{N}$  más recientes junto con los resultados obtenidos en el CIEMAT.**



Como se puede ver en la figura 5.27 Los resultados obtenidos en el CIEMAT son plenamente concordantes con los resultados experimentales más recientes y con el valor de la evaluación. La buena concordancia de todos los resultados, considerando sus incertidumbres, ha permitido validar los métodos utilizados para la medida del periodo de emisores de positrones de periodos muy cortos, como el  $^{13}\text{N}$ , con detectores de Germanio. Como se puede ver, la disminución de la concentración de la impureza de  $^{18}\text{F}$  mejora significativamente la incertidumbre de los resultados experimentales.

## 6. CONCLUSIONES

En el capítulo 2 se ha presentado el procedimiento de calibración en eficiencias de un detector de Germanio basado en una combinación de medidas y cálculos mediante el método de Monte Carlo en un rango de energías amplio (14-1800 keV) con incertidumbres inferiores al 1 %. Con este procedimiento se puede predecir el valor de la eficiencia para energías en las que es difícil o imposible obtener medidas directas. Esta aproximación se basa en el uso de las secciones eficaces de interacción; ello minimiza algunos problemas que pueden aparecer cuando se utilizan ajustes funcionales o interpolaciones numéricas a partir de datos experimentales.

Respecto a la extensión del método a la medida de radionucleidos emisores de positrones, cuyo decaimiento va acompañado de la emisión de radiación de aniquilación de 511 keV, hemos estudiado la influencia de varias disposiciones geométricas fuente/detector. El objeto de este estudio es evaluar el impacto en la estimación de la actividad de la distribución espacial de los emisores de positrones. Los resultados han mostrado que todas las medidas son estadísticamente compatibles. Se puede concluir que mediante la utilización de piezas absorbentes adecuadamente diseñadas se puede medir positrones con eficiencias similares a las de fotones de energía parecida.

El trabajo presentado en el capítulo 3 muestra que los algoritmos diseñados para la optimización numérica de funciones pueden ser adaptados con éxito para el estudio de sistemas de medida. El primer paso es la elección de la función que se va a optimizar: normalmente, una función de la energía de los fotones gamma emitidos por los radionucleidos que componen la muestra. Para predecir los valores de la eficiencia de recuento se puede utilizar tanto una función analítica como un modelo de Monte Carlo. Los algoritmos numéricos probados permiten la optimización de sistemas de medida con un ahorro considerable del tiempo de cálculo. Aunque los métodos descritos pueden utilizarse para la optimización de otros sistemas de medida (otros contenedores, detectores o radionucleidos), los resultados numéricos presentados en las tablas y

gráficas dependen de cada sistema particular considerado y, por tanto, la extrapolación de nuestros resultados a sistemas de medida que utilicen otro tipo de detectores de germanio debe realizarse con cuidado.

En el capítulo 4 hemos extendido el método  $4\pi\gamma$  de medida de la actividad absoluta a emisores de positrones. En particular hemos medido la concentración de actividad de dos disoluciones de  $^{22}\text{Na}$  y  $^{18}\text{F}$ . Los resultados se han comparado con los obtenidos por medio del contador de coincidencias  $4\pi\beta\text{--}\gamma$  para el caso de  $^{22}\text{Na}$ , y con el obtenido por la cámara IG-11 para la disolución de  $^{18}\text{F}$ . Los resultados son consistentes con sus incertidumbres. Las diferencias han sido inferiores al 0,3 % para ambos nucleidos. Una consecuencia interesante es que, si se consigue confinar la aniquilación de los positrones en una zona cercana a la emisión por adición de un absorbente adecuado, puede utilizarse el método  $4\pi\gamma$  directamente suponiendo un esquema virtual compuesto por la emisión de dos fotones de 511 keV seguidos, cuando el esquema de desintegración lo requiera, por uno o varios fotones gamma de desexcitación.

La incertidumbre de la medida con este método se ha estimado en un 0,5 %, con una incertidumbre estadística en el modelo menor del 0,42 % y una de recuento menor del 0,1 %.

En el capítulo 5 se ha propuesto un nuevo método de medida del periodo de emisores de positrones con periodos cortos mediante detectores de Germanio y sistemas de adquisición Digital. La ventaja de este método es que permite realizar un control muy preciso del tiempo muerto del sistema. Se han realizado diversas simulaciones con el método de Monte Carlo para estudiar su posible implementación.

Utilizando esta nueva técnica se ha podido dar un nuevo resultado para el periodo del  $^{18}\text{F}$ . Se ha comprobado que la medida con el detector de Germanio es concordante con las obtenidas por otros métodos. El nuevo valor deducido al combinar las distintas técnicas (cada una con distintas componentes de la incertidumbre de tipo B) tiene una incertidumbre menor que los anteriormente referenciados.

Finalmente se ha medido el periodo del  $^{13}\text{N}$ , utilizando el mismo procedimiento. Aunque la pureza radiactiva de las muestras ensayadas no era la óptima, se ha determinado un valor que es plenamente concordante con los anteriormente publicados. En la medida en que los centros de producción sean capaces de proporcionar muestras

de alta pureza, se podrá realizar una determinación más precisa del periodo de este radionucleido. En todo caso, la buena concordancia de todos los resultados, considerando sus incertidumbres, ha permitido validar los métodos utilizados para la medida del periodo de emisores de positrones de periodos muy cortos con detectores de Germanio.



## REFERENCIAS

- [1] M. M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, E. Browne, V. Chechev, N. Kuzmenko, R. Helmer, A. Nichols, E. Schönfeld, and R. Dersch, "Table of Radionuclides," Monographie BIPM-5, SÈVRES 2004.
  - [2] P. Domínguez Montero, C. Escalada, N. Ferrer, E. García-Toraño, R. Plaza, C. Rodríguez, J. A. Ruiz Guijarro, and J. Rodríguez Zarauz, "PROTOCOLO PARA LA CALIBRACIÓN Y EL USO DE ACTIVÍMETROS," Laboratorio de Metrología de Radiaciones Ionizantes, CIEMAT
  - [3] G. F. Knoll, *Radiation detection Measurement*, 3rd Edition ed. New York: Wiley&Sons, 1999.
  - [4] W. B. Mann, *A Handbook of Radiactivity Measurements Procedures*, second ed.: NCRP, 1985.
  - [5] M. J. Bergen and S. M. Seltzer, "XCOM," 3.1 ed: <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/Text/version.html>, 1999.
  - [6] R. D. Evans, *The Atomic Nucleus*. New York: McGraw Hill, 1955.
  - [7] J. S. Schweitzer and W. Ziehl, "Temperature-Dependence of Nai(Tl) Decay Constant," *Ieee Transactions on Nuclear Science*, vol. 30, pp. 380-382, 1983.
  - [8] E. Hayward and J. Hubbell, "The Albedo of various Material for 1\_MeV Photons," *The Physical Review*, vol. 93, pp. 955-956, 1954.
  - [9] M. J. Berger, *J. Res. Natn. Bur. Stand.*, vol. 55, pp. 343, 1955.
  - [10] M. J. Berger and D. J. Raso, *Radial. Res.*, vol. 12, pp. 20, 1960.
  - [11] D. F. Herbard and P. R. Wilson, *Aust. J. Phys.*, vol. 8, pp. 90, 1955.
  - [12] M. J. Berger, *Method in computational Physics*. New York: Academic Press, 1963.
  - [13] R. G. Helmer, J. C. Hardy, V. E. Iacob, M. Sanchez-Vega, R. G. Neilson, and J. Nelson, "The use of Monte Carlo calculations in the determination of a Ge detector efficiency curve," *Nuclear Instruments and Methods in Physics*
-

- Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 511, pp. 360-381, 2003.
- [14] K. M. Wainio and G. F. Knoll, "Calculated gamma ray response characteristics of semiconductor detectors," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 44, pp. 213-223, 1966.
  - [15] N. V. de Castro and R. J. A. Lévesque, "Photopeak and double-escape peak efficiencies of germanium lithium drift detectors," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 46, pp. 325-332, 1967.
  - [16] G. Gaggero, "Monte Carlo calculations for the photofractions and energy loss spectra of Ge(Li) semiconductor detectors," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 94, pp. 481-492, 1971.
  - [17] G. Aubin, J. Barrette, G. Lamoureux, and S. Monaro, "Calculated relative efficiency for coaxial and planar Ge(Li) detectors," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 76, pp. 85-92, 1969.
  - [18] B. Lal and K. V. K. Iyengar, "Monte Carlo calculations of gamma ray response characteristics of cylindrical Ge(Li) detectors," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 79, pp. 19-28, 1970.
  - [19] B. F. Peterman, S. Hontzas, and R. G. Rystephanick, "Monte Carlo calculations of relative efficiencies of Ge(Li) detectors," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 104, pp. 461-468, 1972.
  - [20] T. Nakamura, "Monte Carlo calculation of peak efficiencies and response functions of coaxial-type Ge(Li) detectors for disk gamma-ray sources," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 131, pp. 521-527, 1975.
  - [21] C. Birattari and A. Salomone, "Efficiency evaluation of gamma-ray solid-state detectors," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 174, pp. 391-399, 1980.
  - [22] R. Rieppo, "Calculated absolute photopeak efficiency values for true coaxial Ge(Li) detectors in the [gamma]-ray energy region 0.1-3.0 MeV with annular source geometry," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 188, pp. 115-117, 1981.
  - [23] K. Debertin and B. Grosswendt, "Efficiency calibration of semiconductor detectors by primary standard sources and Monte Carlo calculations," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol. 203, pp. 343-352, 1982.
  - [24] T. Nakamura and T. Suzuki, "Monte Carlo calculation of peak efficiencies of Ge(Li) and pure Ge detectors to voluminal sources and comparison with environmental radioactivity measurement," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol. 205, pp. 211-218, 1983.
  - [25] L. K. Herold and R. T. Kouzes, "Intrinsic germanium detector efficiency calculations," *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 38, pp. 231-238, 1991.
  - [26] F. Sánchez, E. Navarro, J. L. Ferrero, A. Moreno, C. Roldán, A. Baeza, and J. Paniagua, "A Monte Carlo based method of including gamma self-absorption for

- the analysis of environmental samples," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, vol. 61, pp. 535-540, 1991.
- [27] M. García-Talavera, H. Neder, M. J. Daza, and B. Quintana, "Towards a proper modeling of detector and source characteristics in Monte Carlo simulations," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 52, pp. 777-783, 2000.
  - [28] M. J. Vargas, A. F. Timón, N. C. Díaz, and D. P. Sánchez, "Monte Carlo simulation of the self-absorption corrections for natural samples in gamma-ray spectrometry," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 57, pp. 893-898, 2002.
  - [29] Saïdou, F. Bochud, J.-P. Laedermann, M. G. Kwato Njock, and P. Froidevaux, "A comparison of alpha and gamma spectrometry for environmental natural radioactivity surveys," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 66, pp. 215-222, 2008.
  - [30] M. Dècombaz, J.-J. Gostely, and J.-P. Laedermann, "Coincidence-summing corrections for extended sources in gamma-ray spectrometry using Monte Carlo simulation," *nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, vol. 312, pp. 152-159, 1992.
  - [31] M. García-Talavera, J. P. Laedermann, M. Dècombaz, M. J. Daza, and B. Quintana, "Coincidence summing corrections for the natural decay series in  $\gamma$  spectrometry," *Journal of Radiation and Isotopes*, vol. 54, pp. 769-776, 2001.
  - [32] J.-M. Laborie, G. L. Petit, D. Abt, and M. Girard, "Monte Carlo calculation of the efficiency response of a low-background well-type HPGe detector," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 479, pp. 618-630, 2002.
  - [33] E. García-Toraño, M. Pozuelo, and F. Salvat, "Monte Carlo calculations of coincidence-summing corrections for volume sources in gamma-ray spectrometry with Ge detectors," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 544, pp. 577-583, 2005.
  - [34] P. N. Johnston, M. Hult, and J. Gasparro, "Cascade summing effects in close geometry gamma-ray spectrometry," *Applied Radiation and Isotopes Proceedings of the 15th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications*, vol. 64, pp. 1323-1328, 2006.
  - [35] J. Gasparro, M. Hult, P. N. Johnston, and H. Tagziria, "Monte Carlo modelling of germanium crystals that are tilted and have rounded front edges," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 594, pp. 196-201, 2008.
  - [36] M. C. Lépy, T. Altzitzoglou, D. Arnold, F. Bronson, R. C. Noy, M. Décombaz, F. De Corte, R. Edelmaier, E. H. Peraza, S. Klemola, M. Korun, M. Kralik, H. Neder, J. Plagnard, S. Pommé, J. de Sanoit, O. Sima, F. Ugletveit, L. Van Velzen, and T. Vidmar, "Intercomparison of efficiency transfer software for



- gamma-ray spectrometry," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 55, pp. 493-503, 2001.
- [37] T. Vidmar, M. Korun, A. Likar, and R. Martincic, "A semi-empirical model of the efficiency curve for extended sources in gamma-ray spectrometry," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 470, pp. 533-547, 2001.
- [38] T. Vidmar and A. Likar, "Automated construction of detector models for efficiency interpolation in gamma-ray spectrometry," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 56, pp. 99-103, 2002.
- [39] J. Ródenas, A. Pascual, I. Zarza, V. Serradell, J. Ortiz, and L. Ballesteros, "Analysis of the influence of germanium dead layer on detector calibration simulation for environmental radioactive samples using the Monte Carlo method," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 496, pp. 390-399, 2003.
- [40] S. Hurtado, M. García-León, and R. García-Tenorio, "GEANT4 code for simulation of a germanium gamma-ray detector and its application to efficiency calibration," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 518, pp. 764-774, 2004.
- [41] P. Dryak and P. Kovar, "Experimental and MC determination of HPGe detector efficiency in the 40-2754 keV energy range for measuring point source geometry with the source-to-detector distance of 25 cm," *Applied Radiation and Isotopes*  
*Proceedings of the 15th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications*, vol. 64, pp. 1346-1349, 2006.
- [42] M. Jurado Vargas and A. L. Guerra, "Application of PENELOPE code to the efficiency calibration of coaxial germanium detectors," *Applied Radiation and Isotopes. Proceedings of the 15th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications*, vol. 64, pp. 1319-1322, 2006.
- [43] F. Bochud, C. J. Bailat, T. Buchillier, F. Byrde, E. Schmid, and J.-P. Laedermann, "Simple Monte-Carlo method to calibrate well-type HPGe detectors," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 569, pp. 790-795, 2006.
- [44] I. Vukanac, M. Djurasevic, A. Kandic, D. Novkovic, L. Nadjerdj, and Z. Milosevic, "Experimental determination of the HPGe spectrometer efficiency curve," *Applied Radiation and Isotopes. Proceedings of the 16th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications*, vol. 66, pp. 792-795, 2008.
- [45] J. Boson, G. Ågren, and L. Johansson, "A detailed investigation of HPGe detector response for improved Monte Carlo efficiency calculations," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators,*
-

- Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 587, pp. 304-314, 2008.
- [46] R. Mayol, F. Salvat, J. M. Fernández Varea, E. García-Toraño, and M. Roteta, "A MonteCarlo simulation of response of NaI(Tl) scintillator detectors to gamma rays.," presented at Proceeding of International Symposium "Advances in -, - and -Ray Spectrometry". 1997.
  - [47] F. Salvat, J. M. Fernández-Varea, and J. Sempau, "PENELOPE-2006: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport," NEA OECD Nea 6222, 2006.
  - [48] L. S. Waters, "MCNPX User's Manual. Version 2.3.0," University of California, Los Alamos National Laboratory LA-UR-02-2607, 2002.
  - [49] S. Agostinelli, et al., "G4--a simulation toolkit," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 506, pp. 250-303, 2003.
  - [50] I. Kawrakow, E. Mainegra-Hing, D. W. O. Rogers, F. Tessier, and B. R. B. Walters, "The EGSnrc Code System:  
Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport," NRC Canada NRCC Report PIRS-701, 2009.
  - [51] T. Vidmar, I. Aubineau-Laniece, M. J. Anagnostakis, D. Arnold, R. Brettner-Messler, D. Budjas, M. Capogni, M. S. Dias, L.-E. De Geer, A. Fazio, J. Gasparro, M. Hult, S. Hurtado, M. Jurado Vargas, M. Laubenstein, K. B. Lee, Y.-K. Lee, M.-C. Lepy, F.-J. Maringer, V. Medina Peyres, M. Mille, M. Morales, S. Nour, R. Plenteda, M. P. Rubio Montero, O. Sima, C. Tomei, and G. Vidmar, "An intercomparison of Monte Carlo codes used in gamma-ray spectrometry," *Applied Radiation and Isotopes. Proceedings of the 16th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications*, vol. 66, pp. 764-768, 2008.
  - [52] R. Brun, F. Bruyant, M. Maire, A. C. McPherson, and P. Zancarini, "GEANT3," CERN Data Handling Division, Geneva 1987.
  - [53] O. Sima, D. Arnold, and C. Dovlete, "GESPECOR: A versatile tool in gamma-ray spectrometry," *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, vol. 248, pp. 359-364, 2001.
  - [54] J. P. Both, A. Mazzolo, O. Petit, Y. Penelieu, and B. Roesslinger, "User Manual for version 4.3 of the TRIPOLI-4 Monte Carlo method particle transport computer code," CEA/Saclay, France CEA-Report : CEA-R-6044, 2003.
  - [55] M. M. Bé, J. Lame, F. Piton, F. Lagoutine, N. Coursol, and J. Legrand, "Nucleide 2000, version 2," Laboratoire National Henri Becquerel, 2004.
  - [56] S. Takács, F. Tárkányi, and s. M. Qaim, "Excitation function of  $^{22}\text{Ne}(p,n)^{22}\text{Na}$  reaction: Possibility of production of  $^{22}\text{Na}$  at a small cyclotron," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 47, pp. 303-307, 1996.

- [57] IAEA, "Charged particle cross-section database for medical radioisotope production: diagnostic radioisotopes and monitor reactions.," Vienna tecdoc-1211, 2001.
  - [58] S. Boschi, F. Lodi, G. Cicoria, J. Raul Ledesma, R. Knopp, A. Rizzello, D. Di Pierro, S. Trespidi, and M. Marengo, "Development of a modular system for the synthesis of PET [ $^{11}\text{C}$ ]labelled radiopharmaceuticals," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. In Press, Corrected Proof.
  - [59] K. Suzuki and Y. Yoshida, "Production of [ $^{13}\text{N}$ ]NH $_3$  with ultra-high specific activity," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 50, pp. 497-503, 1999.
  - [60] E. Garcia-Toraño and A. Grau, "Effy, a program to calculate the counting efficiency of beta particles in liquid scintillators," *Computer Physics Communications*, vol. 23, pp. 385-391, 1981.
  - [61] E. Garcia-Toraño and A. G. Malonda, "EFFY, a new program to compute the counting efficiency of beta particles in liquid scintillators," *Computer Physics Communications*, vol. 36, pp. 307-312, 1985.
  - [62] K. Debertin and R. G. Helmer, *Gamma- and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*: North-Holland, 1988.
  - [63] L. A. McNelles and J. L. Campbell, *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 109, pp. 241, 1973.
  - [64] J. M. Freeman and J. G. Jenkin, *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 43, pp. 269, 1966.
  - [65] H. Janssen, "Spline techniques for fitting efficiency curves in gamma-ray spectrometry," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 286, pp. 398-402, 1990.
  - [66] F. Hernández and F. El-Daoushy, "Accounting for incomplete charge collection in Monte Carlo simulations for efficiency of well-type Ge-detectors," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, vol. 498, pp. 340-351, 2003.
  - [67] P. P. Maleka and M. Maucec, "Monte Carlo uncertainty analysis of germanium detector response to [gamma]-rays with energies below 1 MeV," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 538, pp. 631-639, 2005.
  - [68] V. Peyres and E. García-Toraño, "Efficiency calibration of an extended-range Ge detector by a detailed Monte Carlo simulation," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. Proceedings of the 10 th International Symposium on Radiation Physics - ISRP 10*, vol. 580, pp. 296-298, 2007.
  - [69] F. Courtine, T. Pilleyre, S. Sanzelle, and D. Miallier, "Ge well detector calibration by means of a trial and error procedure using the dead layers as a unique parameter in a Monte Carlo simulation," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 596, pp. 229-234, 2008.
-

- 
- [70] R. M. Keyser, "Resolution and sensitivity as a function of energy and incident geometry for germanium detectors," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 5th Topical Meeting on Industrial Radiation and Radioisotope Measurement Applications*, vol. 213, pp. 236-240, 2004.
  - [71] M. Schläger, "Precise modelling of coaxial germanium detectors in preparation for a mathematical calibration," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. Proceedings of the 10th International Symposium on Radiation Physics - ISRP 10*, vol. 580, pp. 137-140, 2007.
  - [72] N. Q. Huy, D. Q. Binh, and V. X. An, "Study on the increase of inactive germanium layer in a high-purity germanium detector after a long time operation applying MCNP code," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 573, pp. 384-388, 2007.
  - [73] M. J. Vargas, N. C. Díaz, and D. P. Sánchez, "Efficiency transfer in the calibration of a coaxial p-type HpGe detector using the Monte Carlo method," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 58, pp. 707-712, 2003.
  - [74] W. H. Press, B. P. Flannerry, S. A. Teukolsky, and W. T. Vetterling, *Numerical Recipes (FORTRAN)*: Cambridge University Press., 1990.
  - [75] H. Aaltonen, S. Klemola, and F. Ugletveit, "Validation of a method for computer calculation of germanium detector efficiencies," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 339, pp. 87-91, 1994.
  - [76] G. Ratel, C. Michotte, L. Johansson, S. Judge, and I. A. Kharitonov, "Update of the BIPM comparison BIPM.RI(II)-K1.Am-241 of activity measurements of the radionuclide  $^{241}\text{Am}$  to include the 2006 VNIIM result, links for the 2003 international comparison CCRI(II)-K2.Am-241 and links for the 2006 regional comparison COOMET.RI(II)-K2.Am-241," *Metrologia*, vol. 44, pp. 06007, 2007.
  - [77] E. García-Toraño, A. Grau Malonda, and J. M. Los Arcos, "EBEGA -- the counting efficiency of a beta-gamma emitter in liquid scintillators," *Computer Physics Communications*, vol. 50, pp. 313-319, 1988.
  - [78] E. García-Toraño and M. Roteta, "Standardization of  $^{67}\text{Ga}$  by  $4\pi\gamma$  (NaI) and  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  coincidence methods," *Applied Radiation and Isotopes. Proceedings of the 14th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications, ICRM 2003*, vol. 60, pp. 353-356, 2004.
  - [79] G. Ratel and C. Michotte, "BIPM comparison BIPM.RI(II)-K1.Mn-54 of activity measurements of the radionuclide  $^{54}\text{Mn}$ ," *Metrologia*, vol. 40, pp. 06025, 2003.
  - [80] E. García-Toraño, V. Peyres, and M. Roteta, "On the standardization of positron emitters by  $4\pi\gamma$  counting," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 570, pp. 84-88, 2007.
-

- [81] IAEA, "Gamma Spectrum Analysis, Activity Calculations and Neutron Activation Analysis (GANAA)." Viena: IAEA, Computer Manual Series 3, 1991.
  - [82] M.-C. Lépy, M.-M. Bé, and F. Píton, "ETNA (Efficiency Transfer for Nuclide Activity measurements). Software for efficiency transfert and coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry," LNHB, CEA-SACLEY LNHB/01/09/A, 2001.
  - [83] U. Fano, "Penetration of Protons, Alpha Particles, and Mesons," *Annual Review of Nuclear Science*, vol. 13, pp. 1-66, 1963.
  - [84] R. Devanathan, "Signal variance in gamma-ray detectors—A review," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 565, pp. 637–649, 2006.
  - [85] H. P. Hotz, J. M. Mathiesen, and J. P. Hurley, "Measurement of Positron Annihilation Line Shapes with Ge(Li) Detector," *The Physical Review*, vol. 170, pp. 351-355, 1968.
  - [86] K. G. Lynn, J. R. MacDonald, R. A. Boie, L. C. Feldman, J. D. Gabbe, M.F.Robbins, E. Bonderup, and J. Golovchenko, "Positron-Annihilation Momentum: Core Contribution and the Independent Particle Model," *Physical Review Letters*, vol. 38, pp. 241-244, 1977.
  - [87] E. 2000, "EMCA 2000 MCA Emulation Software. Instruction Manual rev. 2.0," SILENA, 2000.
  - [88] "Guía para la Expresión de la Incertidumbre de Medida," Centro Español de Metrología, Madrid 2000.
  - [89] G. Bonfanti and G. D. Dora, "Optimum counting geometries of uniform and large gamma sources for Ge(Li). An experimental study," *Radichem. Radioanal. Letters*, vol. 49, pp. 215-230, 1981.
  - [90] J. D. Hemingway, "Investigations towards an improved Marinelli beaker for gamma detectors," *Journal of Radioanal. Nucl. Chemistry*, vol. 99, pp. 299-306, 1986.
  - [91] S. Klemola, "Optimization of sample geometries in low-level gamma spectroscopy," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 369, pp. 578-581, 1996.
  - [92] R. F. Hill, G. J. Hine, and L. D. Marinelli, "The Quantitative Determination of Gamma Radiation in Biological Research," *American Journal of Roentgenology*, vol. 63, pp. 160-169, 1950.
  - [93] M. A. Wolfe, *Numerical Methods for Unconstrained Optimization: An Introduction*. England: Van Nostrand Reinhold Company, 1978.
  - [94] G. Winkler and A. Pavlik, "Some aspects of activity measurements with NaI(Tl) well-type detectors," *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, vol. 34, pp. 547-553, 1983.
-

- 
- [95] M. Décombaz and J.-P. Laedermann, "Efficiency determination of a  $4\pi\gamma$ -detector by numerical simulation," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 369, pp. 375-379, 1996.
  - [96] C. Ballaux, "High-efficiency  $\gamma$ -ray-detection systems for radionuclide metrology," *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, vol. 34, pp. 493-499, 1983.
  - [97] M. Roteta and E. García-Toraño, "An evaluation of the influence of  $\gamma$ - $\gamma$  angular correlation on the coincidence-summing corrections in [gamma]-ray spectrometry," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 369, pp. 665-670, 1996.
  - [98] U. Schötzig, "Activity measurement of  $^{75}\text{Se}$  using integral gamma-ray counting with a  $4\pi$ -NaI(Tl) detector," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 312, pp. 141-145, 1992.
  - [99] E. García-Toraño and A. Grau, "Effy, a program to calculate the counting efficiency of beta particles in liquid scintillators," *Computer Physics Communications*, vol. 35, pp. C-737, 1984.
  - [100] E. L. Grigorescu, M. Sahagia, A. Razdolescu, and C. Ivan, "Standardization of some electron capture radionuclides," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 369, pp. 414-420, 1996.
  - [101] P. J. Campion, "The standardization of radioisotopes by the beta-gamma coincidence method using high efficiency detectors," *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, vol. 4, pp. 232-240, IN15-IN16, 241-248, 1959.
  - [102] C. Michotte, G. Ratel, S. Courte, E. García-Toraño, K. Kossert, O. Nähle, W. M. v. Wyngaardt, and B. R. S. Simpson, "Update report of the BIPM comparison BIPM.RI(II)-K1.Na-22 of activity measurements of the radionuclide  $^{22}\text{Na}$  to include the CIEMAT, PTB and the NMISA," *Metrologia*, vol. 47, 2010.
  - [103] M. Roteta, E. García-Toraño, and L. Rodríguez Barquero, "Standardization of  $^{18}\text{F}$  by coincidence and LSC methods," *Applied Radiation and Isotopes. Proceedings of the 15th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications*, vol. 64, pp. 1199-1202, 2006.
  - [104] G. Ratel, C. Michotte, and M. J. Woods, "Comparisons CCRI(II)-K3.F-18 and APMP.RI(II)-3.F-18 of activity measurements of the radionuclide  $^{18}\text{F}$  and links to the key comparison reference value of the BIPM.RI(II)-K1.F-18 comparison," *Metrologia*, vol. 42 06007, 2005.
  - [105] A. Rytz, "International coherence of activity measurements," *Environment International*, vol. 1, pp. 15-18, 1978.
  - [106] F. Begemann, K. R. Ludwig, G. W. Lugmair, K. Min, L. E. Nyquist, P. J. Patchett, P. R. Renne, C.-Y. Shih, I. M. Villa, and R. J. Walker, "Call for an
-

- improved set of decay constants for geochronological use," *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol. 65, pp. 111-121, 2001.
- [107] S. Pommé, T. Altzitzoglou, R. Van Ammel, G. Sibbens, R. Eykens, S. Richter, J. Camps, K. Kossert, H. Jamben, E. García-Toraño, T. Durán Ramiro, and F. Jaubert, "Experimental determination of the  $^{233}\text{U}$  half-life," *Metrologia*, vol. 46, pp. 439-449, 2009.
- [108] H. Bateman, "Solution of a system of differential equations occurring in the theory of radioactive transformations," *Proc. Cambridge Philos. Soc.*, vol. 15, pp. 423-427, 1910.
- [109] F. G. Kondev, I. Ahmad, J. P. Greene, M. A. Kellett, and A. L. Nichols, "Measurements of the half-life of  $^{246}\text{Cm}$  and the  $\alpha$ -decay emission probabilities of  $^{246}\text{Cm}$  and  $^{250}\text{Cf}$ ," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 65, pp. 335-340, 2007.
- [110] H. Schrader, "Half-life measurements with ionization chambers--A study of systematic effects and results," *Applied Radiation and Isotopes. Proceedings of the 14th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications, ICRM 2003*, vol. 60, pp. 317-323, 2004.
- [111] J. Adam, A. G. Belov, R. Brandt, P. Chaloun, M. Honusek, V. G. Kalinnikov, M. I. Krivopustov, B. A. Kulakov, E.-J. Langrock, V. S. Pronskikh, A. N. Sosnin, V. I. Stegailov, V. M. Tsoupko-Sitnikov, J.-S.-. Wan, and W. Westmeier, "Precision half-life measurements of  $^{140}\text{La}$  with Ge-detector," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, vol. 187, pp. 419-426, 2002.
- [112] P. Leconte, J. P. Hudelot, and M. Antony, "Accurate  $\gamma$ -ray spectrometry measurements of half-life of  $^{92}\text{Sr}$ ," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 66, pp. 1450-1458, 2008.
- [113] E. J. Axton and T. B. Ryves, "Dead-time Corrections in the Measurement of Short-lived Radionuclides," *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, vol. 14, pp. 159-161, 1963.
- [114] A. R. Rutledge, L. V. Smith, and J. S. Merritt, "Experimental study of half-life determinations using  $^{60}\text{Co}$ ," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol. 206, pp. 211-217, 1983.
- [115] M. A. L. d. Silva, M. C. M. d. Almeida, C. J. d. Silva, and J. U. Delgado, "Use of the reference source method to determine the half-lives of radionuclides of importance in nuclear medicine," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 60, pp. 301-305, 2004.
- [116] G. F. Grinyer, C. E. Svensson, C. Andreoiu, A. N. Andreyev, R. A. E. Austin, G. C. Ball, D. Bandyopadhyay, R. S. Chakrawarthy, P. Finlay, P. E. Garrett, G. Hackman, B. Hyland, W. D. Kulp, K. G. Leach, J. R. Leslie, A. C. Morton, C. J. Pearson, A. A. Phillips, F. Saranzin, M. A. Schumaker, M. B. Smith, J. J. Valiente-Dobón, J. C. Waddington, S. J. Williams, J. Wong, J. L. Wood, and E. F. Zganjar, "Pile-up corrections for high-precision superallowed  $\beta$  decay half-life measurements via  $\gamma$ -ray photopeak counting," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, vol. 579, pp. 1005-1033, 2007.

- [117] A. Georgiev and W. Gast, "Digital pulse processing in high-resolution, high-throughput, gamma-ray spectroscopy," *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 40, pp. 770-779, 1992.
- [118] V. T. Jordanov and G. F. Knoll, "Digital synthesis of pulse shapes in real time for high resolution radiation spectroscopy," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 345, pp. 337-345, 1994.
- [119] M. P. Unterweger, "Half-life measurements at the National Institute of Standards and Technology," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 56, pp. 125-130, 2002.
- [120] H. Schrader, "Activity measurements with ionization chambers," BIPM, Sèvres, France BIPM Monograph 4, 1997.
- [121] G. Ratel, C. Michotte, E. García-Toraño, and J. M. LosArcos, "Update of the BIPM comparison BIPM.RI(II)-K1.F-18 of activity measurements of the radionuclide  $^{18}\text{F}$  to include the CIEMAT," *Metrologia*, vol. 41, 2004.
- [122] E. García-Toraño, V. Peyres, and M. R. Ibarra, "The half-life of  $^{18}\text{F}$ ," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. doi:10.1016/j.apradiso.2009.11.052, 2010.
- [123] JCGM/WG1, "Evaluation of measurement data—guide to the expression of uncertainty in measurement," 100 ed: GUM Joint Committee for Guides in Metrology, 2008.